

Hochauflösende Translationsspektroskopie zur
Untersuchung von Elektronentransfer- und
Transferionisationsprozessen beim Stoß von
 Ne^{2+} - und Ar^{3+} -Ionen mit Edelgasatomen

DISSERTATION

zur
Erlangung des Grades eines
Doktors der Naturwissenschaften
der
Abteilung für Physik und Astronomie
an der Ruhr-Universität Bochum

von
Hans-Jürgen Kahlert
Dortmund

Bochum 1983

Hochauflösende Translationsspektroskopie zur Untersuchung
von Elektronentransfer- und Transferionisationsprozessen
beim Stoß von Ne^{2+} - und Ar^{3+} -Ionen mit Edelgasatomen

DISSERTATION

zur

Erlangung des Grades eines

Doktors der Naturwissenschaften

der

Abteilung für Physik und Astronomie

an der Ruhr-Universität Bochum

von

Hans-Jürgen Kahlert

Dortmund

Bochum 1983



Dissertation eingereicht am: 11. 01. 1983

Tag der mündlichen Prüfung: 9. 02. 1983

Referent: Prof. Dr. K. Wieseemann

Korreferent: Prof. Dr. H.J. Kunze

Inhaltsverzeichnis

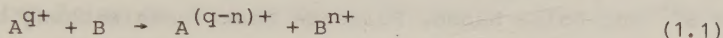
<u>1. Einleitung</u>	1
1.1 Allgemeine Erläuterungen zu Elektronentransferreaktionen	1
1.2 Motivation für experimentelle Untersuchungen	2
1.3 Diskussion experimenteller Verfahren zur Untersuchung von Elektroneneinfangprozessen	3
1.4 Auswahlkriterien der untersuchten Stoßsysteme	4
<u>2. Theorie</u>	6
2.1 Überblick zur Theorie von Elektroneneinfangprozessen	6
2.1.1 Diabatische und Adiabatische Darstellung des Stoßprozesses	6
2.2 Spezielle Umladungstheorien	12
2.3 Theorie zur Transferionisation	15
2.3.1 Definition und Erläuterung der Transferionisation	15
2.3.2 Potentialkurvenmodell zur Transferionisation	17
2.4 Stoßdynamik	24
<u>3. Experimentelle Anordnung</u>	29
3.1 Beschreibung des Strahlengangs	29
3.2 Ionenstrahlerzeugung	30
3.3 Massenselektor	36
3.4 Stoßzellenbereich	37
3.5 Zoomlinsen	39
3.6 Translationsspektrometer	42
3.6.1 Beschreibung der einzelnen Elemente	42
3.6.2 Mechanischer Aufbau	46
<u>4. Durchführung der Messungen</u>	48
4.1 Meßprinzip der Translationsspektroskopie	48
4.2 Fehlerdiskussion	52
4.2.1 Meßungenauigkeit bei der Aufnahme der Energiespektren	52
4.2.2 Fehler in der Bestimmung relativer Wirkungsquerschnitte	53
<u>5. Diskussion der Testmessungen</u>	54
5.1 Primärstrahleigenschaften	54

5.2	Umladung von Ar^{2+} -Ionen in Ne und He	55
6.	<u>Ergebnisse</u>	63
6.1	Umladung von Ne^{2+} -Ionen in Xenon	63
6.2	Umladung von Ne^{2+} -Ionen in Argon und Krypton	75
6.3	Umladung von Ar^{3+} -Ionen in Argon und Neon	80
6.3.1	Charakteristika der Stoßsysteme	80
6.3.2	Kalibrierung der Energieskala	81
6.3.3	Meßergebnisse und Diskussion der Umladungs- spektren des Systems Ar^{3+}/Ar	81
6.3.4	Meßergebnisse und Diskussion der Umladungs- spektren des Systems Ar^{3+}/Ne	84
7.	<u>Zusammenfassung</u>	86
	<u>Referenzen</u>	88

1. Einleitung

1.1 Allgemeine Erläuterungen zu Elektronentransferreaktionen

Der Elektronentransferprozeß (auch Umladungsprozeß genannt) wird durch folgende Reaktionsgleichung beschrieben:



In den untersuchten Prozessen trifft ein q-fach geladenes energiereiches Ion A^{q+} ($q = 2, 3$) auf ein Targetteilchen B (Atom, Molekül). Während der Wechselwirkung fängt das q-fach geladene Ion n Elektronen des Targetteilchens B ein. Das gebildete schnelle Ion liegt nach dem Elektronentransfer im Ladungszustand $(q-n)$ das Targetteilchen im Ladungszustand n vor.

Diese beschriebenen Stoßprozesse können elastisch, inelastisch oder superelastisch ablaufen. Die genauere Untersuchung dieses Sachverhalts ist Inhalt dieser Arbeit. Die Reaktionen werden bei kleinen Stoßenergien untersucht, so daß hauptsächlich die äußeren Elektronenschalen der beteiligten Teilchen miteinander wechselwirken. Die Untersuchungen beschränken sich auf energiereiche Stöße, was folgendes bedeuten soll: Die relative kinetische Energie beider Teilchen im Schwerpunktsystem muß größer sein als die Bindungsenergie der zu transferierenden Elektronen, andererseits soll die Stoßgeschwindigkeit v (Relativgeschwindigkeit der Stoßpartner) kleiner sein als die Bahngeschwindigkeit v_0 der äußeren gebundenen Elektronen.

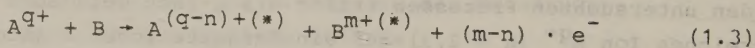
Da die transferierten n Elektronen vor und nach dem Stoß in verschiedenen Atomrümpfen gebunden sind, laufen diese Reaktionen meist super- oder inelastisch ab. Elektroneneinfangprozesse sind daher mit einem Energiedefekt ΔE verbunden, der sich nach folgender Gleichung ergibt:

$$\Delta E = U_{i1} + U_{i2} - (U_{i1}' + U_{i2}') \quad (1.2)$$

Hier sind U_{i1} und U_{i2} die inneren Energien der Stoßpartner vor dem

Elektronentransfer, entsprechend U_{i1}' und U_{i2}' nach dem Stoß (1,2: kennzeichnet die einzelnen Teilchen). Der Energiedefekt ΔE ist vom Anregungszustand (*) der gebildeten Ionen $A^{(q-n)+(*)}$ und $B^{n+(*)}$ abhängig.

Neben reinen Elektroneneinfangprozessen werden in dieser Arbeit Reaktionen beschrieben, die zusätzlich eine Ionisation des Targets B^{n+} zur Folge haben. Folgende Reaktionsgleichung beschreibt die Transferionisation:



Die Anzahl der transferierten Elektronen ist n , m gibt den Ladungszustand des Targets nach dem Stoß und $(m-n)$ die Anzahl freier Elektronen an, die während oder nach dem Stoß emittiert werden. Für $n = m$ liegt der reine Umladungsprozeß vor.

1.2 Motivation für die experimentellen Untersuchungen

Die Motivation für die genauere Untersuchung von Elektroneneinfangreaktionen liegt einerseits darin, die wechselwirkenden elektronischen Zustände der beim Stoß gebildeten Quasimoleküle genau zu identifizieren, um ein besseres Verständnis dieser Prozesse zu erlangen.

Auf der anderen Seite haben diese Reaktionen Bedeutung für verschiedene Anwendungsbereiche. Elektroneneinfangreaktionen spielen eine Rolle in Fusionsplasmen (de Heer)¹ bei der Erklärung von Aufheizungsverlusten. Ionisationsgrade in astrophysikalischen Plasmen können durch Umladungsreaktionen verstanden werden (Steigmann)².

Für die Entwicklung neuer Lasersysteme mit Wellenlängenbereichen im Vakuum UV und Röntgengebiet sind Elektroneneinfangreaktionen von Bedeutung (Anderson et al.)³. Da vor allem hochangeregte Zustände besetzt werden, könnte die durch Umladung erzielte Besetzungsinversion für den Betrieb eines Lasers benutzt werden.

1.3 Diskussion experimenteller Verfahren zur Untersuchung von Elektroneneinfangprozessen

Um einen genaueren Einblick in den Ablauf der in Abschnitt 1.1 beschriebenen Reaktion zu gewinnen, gibt es verschiedene experimentelle Möglichkeiten. Ziel ist es, Informationen über die elektronischen Zustände der Stoßpartner nach dem Elektronentransfer zu erhalten. Folgende drei Methoden finden bei der Untersuchung dieser Prozesse Anwendung:

Photonenspektroskopie

Elektronenspektroskopie

Ionentranslationsspektroskopie

a) Photonenspektroskopie

Der Nachweis der bei der Umladung entstandenen angeregten Ionen kann durch Spektroskopie emittierter Photonen erfolgen. Dies gelingt mit sehr hoher Auflösung - charakteristisch für die optische Spektroskopie -, so daß energetisch dichtliegende Niveaus getrennt nachgewiesen werden können. Werden jedoch bei der Umladung Ionen in Grundzuständen oder metastabilen Zuständen erzeugt, so liefert diese Meßmethode keine Informationen. Experimentelle Schwierigkeiten liegen in der Erzeugung eines geeigneten großen Primärionenstroms ($I > \mu A$), der nötig ist, um ein geeignetes Photonensignal zu erzielen (Lichtemission in den gesamten Raumwinkel).

Messungen mit dieser Technik sind u.a. von Beyer et al.⁴, Bloemen et al.⁵ und Brazuk et al.⁶ durchgeführt worden.

b) Elektronenspektroskopie

Entstehen durch den Elektroneneinfang Ionen oder Quasimoleküle (als Quasimolekül wird das im Stoß gebildete Zweizentrensystem bezeichnet) in autoionisierenden Zuständen, so liefert die Untersuchung der emittierten Elektronen hinsichtlich ihrer kinetischen Energie Daten über diese Zustände. Niehaus und Ruf⁷ untersuchten u.a. mit dieser Technik die Transferionisation im System He^{2+}/Hg . Andere Autoren, die diese Meßmethode verwenden, sind Woerlee et al.⁸, Morgenstern et al.⁵ und Nie-

haus¹⁰.

c) Ionentranslationsspektroskopie

Diese Methode beinhaltet die Bestimmung der kinetischen Energie von Ionen. Für die Bestimmung des Energiedefekts ΔE ist die Messung der kinetischen Energie der primären Projektilionen und der gebildeten umgeladenen Projektilionen oder der gebildeten Targetionen unter einem bestimmten Nachweiswinkel erforderlich. Im Prinzip können die Zustände der Reaktionsprodukte festgelegt werden.

Erforderlich für die Translationsspektroskopie ist eine große Energie- und Winkelauflösung im Experiment. Neben einem hochauflösenden Spektrometer benötigt man einen energetisch "scharfen" Primärionenstrahl, um einzelne dichtliegende Zustände der Reaktionsprodukte getrennt nachweisen zu können (typisch < 0.5 eV).

Umladungsreaktionen wurden von verschiedenen Autoren mit dieser Technik untersucht, jedoch mit einer Auflösung von einigen Elektronenvolt (z.B. Huber)¹¹. Neueste Experimente mit zweifachgeladenen Argonionen erreichen eine auflösbare Energieunschärfe von ca. 0.6 eV (Kamber et al.)^{12,13}.

1.4 Auswahlkriterien der untersuchten Stoßsysteme

In der vorliegenden Arbeit wird über Untersuchungen von Umladungsreaktionen zweifach- und dreifachgeladener Edelgasionen mit Hilfe der Ionentranslationsspektroskopie berichtet.

Zu diesem Zweck wurde eine Strahlapparatur mit hochauflösendem Translationsspektrometer aufgebaut.

Neben der Identifikation energetisch dichtliegender Reaktionskanäle wurde der Einfluß metastabiler Projektilionen untersucht.

Das Stoßsystem Ar^{2+}/Ne zeichnet sich dadurch aus, daß nur ein dominanter Reaktionskanal energetisch gut getrennt von anderen möglichen Reaktionsabläufen (ca. 10 eV Abstand) - gemessen wurde

(siehe Huber¹¹ und Kamber¹²). Eine Beimischung verschiedener Projektilezustände im Primärstrahl wird in diesem System untersucht. Ähnlich liegen die Sachverhalte im Stoßsystem Ar^{2+}/He . Beide Stoßsysteme werden als Testreaktionen herangezogen.

Im Stoßsystem Ne^{2+}/Xe dagegen liegen für den Einelektronentransfer theoretisch mehrere Ausgangskanäle vor. Hier ist zusätzlich aus energetischen Gründen zu erwarten, daß die Transferionisation (zusätzlich zum Elektronentransfer wird ein Elektron vom Xe-Target gelöst) von Bedeutung ist. Grobe Messungen von W. Kahlert¹⁴ zeigten, daß Energiedefekte zwischen + 2 eV und + 10 eV eine wichtige Rolle spielen. Die Bedeutung und der Mechanismus des Transferionisationsprozesses wurden aber wegen der unscharfen Energieanalyse nicht geklärt. Optische Messungen von Rille¹⁵ bei Stoßenergien um 40 keV (E_{lab}) lieferten Hinweise auf metastabile Ne^{2+} -Ionen im Primärstrahl. Die Rolle der Transferionisation wird von diesen Autoren diskutiert, jedoch ein eindeutiger Nachweis kann nicht geführt werden.

Die Umladung dreifachgeladener Argon-Ionen in Ar und Ne wird im anschließenden Teil behandelt. Erste hochaufgelöste Translationspektren gebildeter Ar^{2+} -Ionen werden vorgestellt und diskutiert.

Im folgenden soll zunächst eine Zusammenfassung über theoretische Grundlagen von Umladungsreaktionen gegeben werden. Speziell wird die Theorie von Autoionisationsprozessen (Transferionisation) behandelt. Die Beschreibung des Experiments und vorgenommener Testmessungen folgt. Schließlich werden die Meßergebnisse vorgestellt und diskutiert.

2. Theorie

2.1 Überblick zur Theorie von Elektroneneinfangprozessen

Ziel einer theoretischen Beschreibung von Elektroneneinfangreaktionen ist die Bestimmung von Elektronenübergangswahrscheinlichkeiten. Ein wesentlicher Parameter für die theoretische Behandlung ist die Relativgeschwindigkeit v beider Teilchen während des Stoßes. Im Vergleich mit der Bahngeschwindigkeit v_0 der gebundenen Elektronen, die an der Wechselwirkung beteiligt sind, legt diese Geschwindigkeit v die Anwendung von zwei verschiedenen Modellen fest.

Ist die Stoßgeschwindigkeit v klein gegen v_0 , so bleibt den äußeren Elektronenhüllen genügend Zeit für eine Umordnung unter dem gegenseitigen Einfluß bei der Annäherung. Die Zustände des kurzlebigen Stoßsystems sind quasimolekular während des Stoßes. Für die mathematische Beschreibung ist es daher erforderlich, Molekülzustände zu konstruieren. Unter dem Einfluß der kinematischen Störung wird die Übergangswahrscheinlichkeit p zwischen zwei Zuständen berechnet. Betrachten wir den Fall, daß die Relativgeschwindigkeit groß gegen v_0 ist, so können die kurzlebigen Stoßsysteme während des Stoßes durch atomare Wellenfunktionen beschrieben werden. Den äußeren Elektronenhüllen der Stoßpartner bleibt keine Zeit der Umorientierung, weil die Zeitskala des Stoßprozesses viel kleiner als die der Elektronenbewegung ist.

In der vorliegenden Arbeit sind Umladungsreaktionen untersucht für den Geschwindigkeitsbereich $v \ll v_0$. Eine eingehende theoretische Behandlung von Umladungsstößen wird z.B. von Janev¹⁶ durchgeführt. Die mathematische Handhabung von Molekülzuständen wird beispielsweise von Butler¹⁷ beschrieben.

2.1.1 Diabatische und Adiabatische Darstellung des Stoßprozesses

Die Grundidee für die quantenmechanische Behandlung des molekularen Problems liegt in der Zerlegung des totalen Hamiltonoperators H_{tot} . Wegen des großen Massenunterschieds zwischen Kernen und Elektronen liegt im Falle kleiner Stoßgeschwindigkeiten

($v \ll v_0$) eine sehr viel langsamere Bewegung der Kerne als der Elektronen vor.

$$H_{\text{tot}} = H_{\text{el}} + T_R \quad (2.1)$$

Der Hamiltonoperator des gesamten Systems wird zerlegt in den Operator der kinetischen Energie der Kerne T_R und den sogenannten elektronischen Anteil H_{el} . Der Operator T_R ergibt sich wie folgt:

$$T_R = - \frac{\hbar^2}{2\mu} \cdot \Delta_R \quad (2.2)$$

Hier ist μ die reduzierte Masse der Stoßpartner A und B. Der Index R bedeutet, daß nur Ableitungen nach dem Relativabstand R der Kerne auftreten.

Der elektronische Anteil des Hamiltonoperators besteht aus fünf relevanten Anteilen:

$$H_{\text{el}} = \underbrace{\sum_{i=1}^N \left(- \frac{\hbar^2}{2m_e} \vec{\nabla}_i^2 \right)}_{\text{I}} - \underbrace{\frac{Z_A \cdot e^2}{4\pi\epsilon_0 r_{iA}} - \frac{Z_B \cdot e^2}{4\pi\epsilon_0 r_{iB}}}_{\text{II}} + \underbrace{\sum_{j=i+1}^N \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0 \cdot r_{ij}})}_{\text{III}} + \underbrace{\frac{Z_A \cdot Z_B \cdot e^2}{4\pi\epsilon_0 \cdot R}}_{\text{IV}} + \underbrace{H_{\text{magn.}}}_{\text{V}}$$

In Gleichung (2.3) bedeuten m_e die Elektronenmasse, r_{iA} , r_{iB} , r_{ij} die Abstände des i-ten Elektrons vom Kern A und B bzw. vom Elektron j, R ist der Relativabstand der Kerne A und B.

H_{el} setzt sich zusammen aus dem Operator der kinetischen Energie der Elektronen (Anzahl N) (Term I), der Coulombschen Wechselwirkung der Elektronen mit den Kernen A und B (Kernladungszahlen Z_A und Z_B) (Term II), der Elektronen untereinander (Term III), der Kerne untereinander (Term IV) und der magnetischen Wechselwirkungsenergie des Systems (Term V).

Wegen der schwachen Kopplung von Kern- und Elektronenbewegung

definiert man den Gesamtzustand Ψ des Quasimoleküls als Linearkombination von Produkten der Kernwellenfunktionen $\chi_k(\vec{R})$ und der elektronischen Wellenfunktion $\psi_k(\vec{R}, \vec{r})$, wobei ψ_k neben den Elektronenkoordinaten $\vec{r}$ als Parameter die Relativkoordinate $\vec{R}$ der Kerne enthält.

$$\Psi = \sum_k \chi_k(\vec{R}) \cdot \psi_k(\vec{r}, \vec{R}) \quad (2.4)$$

Der definierte Satz elektronischer Eigenfunktionen $\{\psi_k\}$ soll vollständig und orthogonal sein. Setzt man die Gesamtwellenfunktion Ψ in die stationäre Schrödingergleichung ein

$$H_{\text{tot}} \cdot \Psi = E_g \cdot \Psi \quad (2.5)$$

$$(E_g = \text{Gesamtenergie})$$

und bildet beiderseitig das Skalarprodukt mit einem elektronischen Zustand $\psi_i(\vec{R}, \vec{r})$, so erhält man folgenden Ausdruck:

$$(T_R + H_{ii} + K_{ii} - E_g) \chi_i = \sum_{k \neq i} (H_{ki} + K_{ki}) \chi_k \quad (2.6)$$

Benutzt werden folgende Abkürzungen für die Skalarprodukte:

$$H_{ki} = \langle \psi_i | H_{\text{el}} | \psi_k \rangle \quad (2.6.1)$$

$$K_{ki} = \langle \psi_i | \left(-\frac{\hbar^2}{2\mu} \vec{\nabla}_R^2 \right) | \psi_k \rangle - \frac{\hbar^2}{\mu} \langle \psi_i | \vec{\nabla}_R | \psi_k \rangle \cdot \vec{\nabla}_R \quad (2.6.2)$$

Zwei verschiedene Kernzustände χ_k und χ_i sind gekoppelt durch die Matricelemente H_{ki} und K_{ki} . H_{ki} wird die Konfigurationswechselwirkung der elektronischen Zustände genannt, K_{ki} stellt die kinetische Kopplung zwischen Kern- und Elektronenbewegung dar. Zur Vereinfachung der Gleichung 2.6 werden Annahmen über die elektronischen Funktionen ψ_k gemacht.

In der adiabatischen Darstellung werden die Funktionen ψ_k identifiziert mit den Eigenzuständen ϕ_k des elektronischen Hamiltonoperators H_{el} . Unter Verwendung dieser Definition wird aus Gleichung

chung 2.6:

$$(T_R + K_{ii}^{\text{adiab.}} + U_i - E_g) \chi_i^{\text{adiab.}} = \sum_{k \neq i} K_{ki}^{\text{adiab.}} \chi_k^{\text{adiab.}} \quad (2.7)$$

mit:

$$\langle \phi_i | H_{\text{el}} | \phi_k \rangle = U_k(R) \cdot \delta_{ki} \quad (2.7.1)$$

$$\phi_k = \psi_k \quad (2.7.2)$$

Verschiedene Kernzustände χ_i und χ_k sind durch den kinetischen Kopplungsoperator K_{ki} korreliert.

Im Falle stabiler Molekülzustände ϕ_k oder langsamer Stoßprozesse sind die Matrixelemente des Operators K_{ki} im allgemeinen vernachlässigbar klein. In dieser Näherung kann die rechte Seite von Gleichung (2.7) vernachlässigt werden, und es entsteht ein entkoppeltes Gleichungssystem für Kernzustände χ_i im elektronischen Potential U_i (Born-Oppenheimer-Näherung)¹⁸. Der Stoßprozeß wird adiabatisch genannt, da Übergänge zwischen verschiedenen Kernzuständen unwahrscheinlich sind.

Der Kopplungsoperator K_{ki} darf jedoch in vielen dynamischen Stoßprozessen (z.B. bei Umladungsreaktionen) bei bestimmten Kernabständen R nicht vernachlässigt werden. Dies ist in der Regel in einem R -Bereich der Fall, wo die elektronischen Energien (Potentialkurven) U_i zweier Molekülzustände vergleichbare Werte annehmen. Die Potentialkurven U_i führen in diesem R -Bereich eine Pseudokreuzung (avoided crossing) aus, falls beide Molekülzustände gleiche Symmetrie haben (aus quantenmechanischen Gründen liegt die Pseudokreuzung nur dann vor, wenn die adiabatischen Zustände gleiche Symmetrie haben: Projektion des Gesamtbahndrehimpulses auf Kernverbindungsachse identisch). Der Operator K_{ki} verursacht zwischen adiabatischen (stabilen) Molekülzuständen eine starke nichtadiabatische Kopplung, so daß Übergänge zwischen diesen Zuständen wahrscheinlich werden.

In einer anderen Darstellung wählt man die Zustände $\{\psi_k\}$ so, daß das Matrixelement K_{ki} klein gegen eins ist im gesamten R-Raum. Diese sogenannten diabatischen Zustände ϕ_k sind keine Eigenfunktionen des Operators H_{el} . Gleichung (2.6) erhält folgende Form:

$$(T_R + H_{ii} - E_g) \chi_i^{diab.} = - \sum_{k \neq i} H_{ki} \chi_k^{diab.} \quad (2.8)$$

Das Matrixelement $H_{ii} = \langle \phi_i | H_{el} | \phi_i \rangle$ stellt die entsprechende elektronische Energie (Potentialkurve) des diabatischen Zustands dar. Zwei verschiedene diabatische Zustände eines Systems können bei bestimmten Abständen R gleiche Werte annehmen (es gilt nicht die 'Nichtüberkreuzungsregel' von Neumann und Wigner)³⁴.

Die zugehörigen diabatischen Potentialkurven (H_{ii} , H_{kk} aufgetragen gegen R) können einen Kreuzungspunkt haben (siehe Fig. 2.1). Repräsentieren die diabatischen Zustände ϕ_k stationäre Zustände des Systems für $R \rightarrow \infty$, dann tritt die erwähnte Kreuzung bei Abständen R auf, bei denen die korrespondierenden adiabatischen Potentialkurven $U_i(R)$ und $U_k(R)$ eine Pseudokreuzung ausführen.

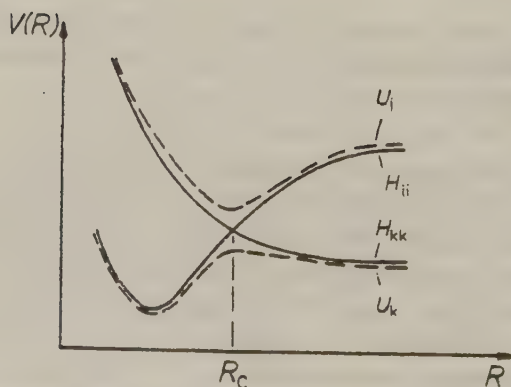


Fig. 2.1 Adiabatische und korrespondierende diabatische Potentialkurven zweier Molekülzustände

Für die praktische mathematische Behandlung von Stoßproblemen ist die Wahl zwischen adiabatischer und diabatischer Darstellung der Molekülzustände wichtig. Gewöhnlich sind die Wellenfunktionen ψ_k nur in einer Näherung bekannt, die das asymptotisch physikalische Verhalten berücksichtigt. Da dies nicht stationäre Zustände des Systems sind, hat in der Praxis die diabatische Darstellung eine besondere Bedeutung (siehe O'Malley)¹⁹.

2.1.2 Halbklassische Behandlung des Stoßprozesses

In der halbklassischen Betrachtung wird die Kernbewegung (Relativkoordinate der Kerne des Quasimoleküls) durch seine klassische Bahn $\vec{R} = \vec{R}(t)$ beschrieben. Diese Näherung ist physikalisch sinnvoll, wenn die quantenmechanische Unschärfe der Bahn klein ist gegen den kleinsten Abstand der Stoßpartner. Die Zustandsfunktion $\psi(\vec{r}, \vec{R}, t)$ gehorcht der zeitabhängigen Schrödingergleichung. Verschiedene stationäre elektronische Zustände $\psi_i(\vec{r}, \vec{R})$ des molekularen Systems sind durch folgenden Term korreliert:

$$W_{ki} = \langle \psi_i | (H_{el} - i\hbar \frac{\partial}{\partial t}) | \psi_k \rangle \quad (2.9)$$

Die Funktionen ψ_i und ψ_k sind durch den Parameter $R(t)$ während des Stoßprozesses zeitabhängig. Neben der Konfigurationswechselwirkung (siehe Abschnitt 2.2) $\langle \psi_i | H_{el} | \psi_k \rangle$ liegt ein dynamischer Term vor. Folgende Umschreibung gilt:

$$\langle \psi_i | -i\hbar \frac{\partial}{\partial t} | \psi_k \rangle = -i\hbar \vec{v} \langle \psi_i | \vec{\nabla}_R | \psi_k \rangle$$

mit $\vec{v} = \frac{\partial \vec{R}}{\partial t} \quad (2.10)$

Ersetzt man $\vec{v} = \frac{\vec{p}}{\mu}$ durch den quantenmechanischen Operator ($\vec{p} = -i\hbar \vec{\nabla}_R$), so sieht man im Vergleich mit Gleichung (2.6.2) in Abschnitt 2.2, daß der Operator $-i\hbar \frac{\partial}{\partial t}$ das halbklassische Analogon zum kinematischen Kopplungsoperator K ist.

$$\hbar i \vec{v} \langle \psi_i | \vec{\nabla}_R | \psi_k \rangle \rightarrow \frac{\hbar^2}{\mu} \langle \psi_i | \vec{\nabla}_R | \psi_k \rangle \vec{\nabla}_R \quad (2.11)$$

Die Größe des Matrixterms W_{ki} (2.9) ist ein Maß für die Wahrscheinlichkeit eines nicht adiabatischen Übergangs zwischen zwei Molekülzuständen. Eine sinnvolle Zerlegung dieses Ausdrucks gelingt, wenn ein geeignetes Koordinatensystem (mit der Kernverbindungsachse des Moleküls rotierendes Koordinatensystem) verwendet wird (siehe R.A. Mapleton)²⁰.

$$W_{ki} = H_{ki} + K_{rad} + K_{rot} \quad (2.12)$$

Der erste Term ($\langle \psi_i | H_{el} | \psi_k \rangle = H_{ki}$) beschreibt die Konfigurationswechselwirkung, die in der diabatischen Darstellung die Übergänge zwischen verschiedenen Zuständen induziert. Die Ausdrücke zwei und drei sind dynamische Kopplungsterme, die im adiabatischen Bild von Null verschieden sein können. Die radiale Bewegung (Radialkopplungsterm K_{rad}) einerseits sowie die Rotationsbewegung (Rotationskopplung K_{rot}) andererseits der Stoßpartner zueinander verursachen Übergänge. Radialkopplung und Konfigurationswechselwirkung sind von Bedeutung bei größeren Kernabständen (einige 10^{-10} m), die Rotationskopplung spielt eine Rolle vornehmlich bei hohen Stoßgeschwindigkeiten sowie bei kleineren Kernabständen R (siehe Russek, Ref. 24).

In der diabatischen Darstellung können auch bei nicht kreuzenden Potentialkurven Übergänge stattfinden, wenn der Abstand der Potentialkurven der korrelierten Molekülzustände in der Größenordnung der Wechselwirkungsenergie ist.

$$2|H_{ki}| \sim |H_{kk} - H_{ii}| \quad (2.13)$$

mit $H_{ki} = \langle \psi_i | H_{el} | \psi_k \rangle$

$$H_{kk} = \langle \psi_k | H_{el} | \psi_k \rangle$$

Dieser Sachverhalt wird unter dem Namen Demkov-Kopplung zusammengefaßt (Demkov)²¹.

2.2 Spezielle Umladungstheorien

Die theoretische Behandlung des Umladungsprozesses beinhaltet als

Ziel die Berechnung von Zustandsübergangswahrscheinlichkeiten. Um einen Vergleich mit dem Experiment vornehmen zu können, ist es notwendig, den Wirkungsquerschnitt einer Reaktion zu berechnen. Hier stellt sich die Aufgabe, totale und differentielle Wirkungsquerschnitte als Funktion der Stoßgeschwindigkeit zu bestimmen. Dabei ist im besonderen die Bestimmung der Übergangswahrscheinlichkeit für einzelne Endzustände des Quasimoleküls wichtig.

Landau²² und Zener²³ entwickelten eine Theorie zu Umladungsreaktionen, die nur zwei Zustände - Anfangs- und Endzustand - berücksichtigt. Der Landau-Zener-Formalismus liefert die Übergangswahrscheinlichkeit p zwischen zwei Molekülzuständen.

$$p = \exp \left\{ - \frac{2\pi |H_{ki}|^2}{\hbar^2} \cdot \frac{1}{v_R \cdot b} \right\} = \exp \left(- \frac{v_{ki}}{v_R} \right) \quad (2.14)$$

$$H_{ki} = \langle \psi_i | H_{el} | \psi_k \rangle$$

$v_R = \dot{R}$: Radialgeschwindigkeit

b = Differenz der Potentialkurvensteigungen am Übergangsabstand R_c

Berechnet wird mit der Übergangswahrscheinlichkeit p der Wirkungsquerschnitt der Reaktion. Haben beide Zustände gleiche Symmetrie, ($\Lambda_i = \Lambda_k$, Projektion des Gesamtbahndrehimpulses der Elektronen auf Kernverbindungsachse) so liefert nur der Radialkopplungskern in Gleichung (2.12) einen Beitrag.

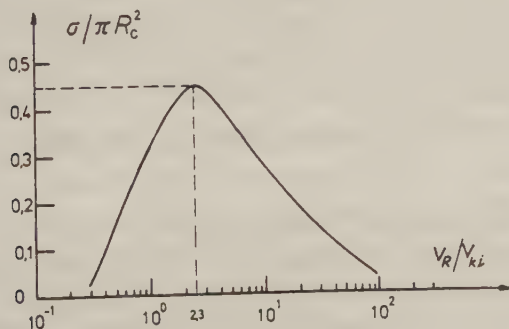


Fig. 2.2 Verlauf des Wirkungsquerschnitts σ in der Zweizustandsnäherung im Falle reiner Radialkopplung

In Fig. 2.2 ist der berechnete Wirkungsquerschnitt als Funktion des Geschwindigkeitsverhältnisses v_R/v_{ki} dargestellt.

Der maximale Wirkungsquerschnitt wird für den Wert $v_R/v_{ki} = 2.36$ vorausgesagt. Charakteristisch ist die starke Energieabhängigkeit des berechneten Wirkungsquerschnittes. Ein kritischer Punkt der beschriebenen Theorie ist die Forderung, daß Übergänge nur stattfinden bei dem Kreuzungsabstand R_c der diabatischen Potentialkurven. Ein Vergleich gemessener totaler Wirkungsquerschnitte mit theoretischen Daten ist nur sinnvoll, wenn das Zwei-Zustands-Modell auch physikalisch erfüllt ist. Liegen mehrere Ausgangskanäle vor, so ist ein Vergleich mit dem theoretischen Modell nur vernünftig, wenn die Ausgangszustände unabhängig voneinander besetzt werden.

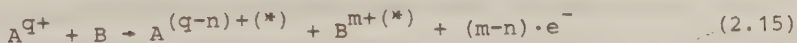
Das Zwei-Zustands-Modell ist am ehesten erfüllt für Umladungsreaktionen zwischen niedriggeladenen Ionen ($q \leq 2$) und neutralen Atomen. In zweifachgeladenen Systemen werden in vielen Fällen Energieabhängigkeiten des Wirkungsquerschnittes gemessen. Für höhergeladene Projektile ist die Zwei-Zustands-Näherung nicht mehr anwendbar, da meist viele miteinander wechselwirkende Reaktionskanäle vorliegen. Der Übergangsradius R_c verliert seine Bedeutung, da Übergangsbereiche ΔR wichtig werden. Man beobachtet weitgehend stoßenergieunabhängige Wirkungsquerschnitte, was mit der Überlagerung einzelner versetzter Landau-Zener-Kurven grob erklärbar ist. Von Olson und Salop^{25,26} wurde auf den Grundlagen des Landau-Zener-Formalismus das Absorptionsmodell (Erweiterung auf viele Kurvenkreuzungen) entwickelt für Umladungsreaktionen mehrfachgeladener Ionen mit Neutralteilchen. Zur theoretischen Beschreibung der Umladung mehrfachgeladener Ionen schlagen Chibisov²⁷ und Grozdanov, Janev²⁸ ein Tunnel- oder Zerfallsmodell vor, Ryufuku et al.²⁹ beschreibt die Umladung in einem Modell klassisch erlaubter Übergänge.

Neben diesen genannten theoretischen Modellen gibt es sogenannte "close coupling Rechnungen", die die numerische Lösung der zeitabhängigen Schrödinger-Gleichung unter Verwendung molekularer oder atomarer Wellenfunktionen vernehmen (z.B. Vaaben, Briggs³⁰; Butler¹⁷; Salop, Olson³¹).

2.3 Theorie zur Transferionisation

2.3.1 Definition und Erläuterung der Transferionisation

Findet eine Elektrontransferreaktion statt mit gleichzeitiger Bildung eines freien Elektrons (Energie ϵ), so spricht man von einer Transferionisation. Folgende Reaktionsgleichung beschreibt den Prozeß (siehe Gleichung (1.3)).



$$m > n$$

In einfachster Form kann der Prozeß wie folgt beschrieben werden:

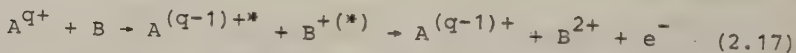
Ein Ion A^{q+} (Ladungszahl q), dessen Rekombinationsenergie zum Grundzustand des Ions $A^{(q-1)+}$ E_{Re} beträgt, führt einen Stoß mit einem Targetatom B aus, dessen erstes Ionisationspotential E_{I1} kleiner als E_{Re} ist. Wird während des Stoßes ein Elektron vom Target B in den Grundzustand des Ions $A^{(q-1)+}$ transferiert, so wird innere Energie des Systems in kinetische umgewandelt, wenn die Stoßpartner wieder auseinanderlaufen. Die dem Stoßsystem zugeführte kinetische Energie E^* wird nach Trennung der Stoßpartner ($R \rightarrow \infty$) angegeben durch:

$$E^*(R \rightarrow \infty) = E_{Re} - E_{I1} \quad (2.16)$$

Bei kleineren Abständen R , die während der Wechselwirkung der Stoßpartner durchlaufen werden, ist die Energie E^* gegeben durch den energetischen Abstand der korrespondierenden Potentialkurven.

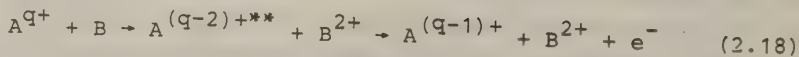
Ist das zweite Ionisationspotential des Targetatoms B E_{I2} kleiner als die asymptotische Energie $E^*(R \rightarrow \infty)$ ($E_{Re} > E_{I1} + E_{I2}$), so liegt der Zustand des durch Umladung entstandenen Quasimoleküls für große Abstände der Stoßpartner im Ionisationskontinuum der Molekülkonfiguration, die aus zweifachgeladenem Targetion, Elektron mit kinetischer Energie ϵ und umgeladenem Projektilion besteht.

Das gebildete angeregte Quasimolekül kann spontan ein Elektron der Energie ϵ emittieren. Da die Anregungsenergie E^* ihren Ursprung in einer Elektronentransferreaktion hat, wird dieser Prozeß direkte quasimolekulare Transferionisation genannt (Prozeß I siehe Gleichung 2.15). Die Erhaltung der augenblicklichen elektronischen Energie ist während des Elektronenübergangs gewährleistet, daher spricht man von Resonanzprozessen. Läuft die Reaktion über die Bildung eines Zwischenzustandes ab, der durch Elektronentransfer besetzt wird, so wollen wir darunter die indirekte oder zweistufige quasimolekulare Transferionisation verstehen (Prozeß II). Prozeß II wird durch folgende Reaktionsgleichung beschrieben:



Durch einen Einelektronentransfer wird ein angeregtes Quasimolekül gebildet, dessen Anregungsenergie asymptotisch in dem entstandenen Ion $A^{(q-1)+*}$ (oder auch B^{+*}) und der freigesetzten kinetischen Energie gespeichert ist. Wie bei der Penningionisation⁵² wird bei kleinen Kernabständen diese Energie auf das Ion B^{+} übertragen und ein Elektron der Energie ϵ emittiert.

Außer molekularen können atomare Autoionisationszustände durch Elektronentransfer besetzt werden. Wenn zwei Elektronen gleichzeitig vom Target B zum Projektil A^{q+} transferiert werden, so kann das gebildete Ion $A^{(q-2)+**}$ in einem doppelt angeregten Zustand vorliegen. Ist dieser Zustand instabil bez. Autoionisation, so wird ein Elektron mit kinetischer Energie ϵ emittiert. Prozeß III hat folgende Reaktionsgleichung:



Kishinevskii und Parilis³² haben ein Modell für die theoretische Beschreibung der Prozesse I, II, III entwickelt. Die Wahrscheinlichkeit für den Ablauf einer Transferionisation wird beschrieben durch den Kopplungsterm zwischen dem diskreten Zustand des

Quasimoleküls und einem Kontinuumszustand (freies Elektron mit kinetischer Energie ϵ). Prozeß I und Prozeß II laufen nur bei relativ kleinen Kernabständen der Stoßpartner ab, da eine starke Wechselwirkung beider Stoßpartner für die Ionisation notwendig ist. Der Prozeß III führt bei allen Kernabständen zur Autoionisation, wenn der Zwei-Elektronentransfer stattgefunden hat, da es sich um atomare Autoionisation handelt.

2.3.2 Potentialkurvenmodell zur Transferionisation

Für große Abstände R können die Potentialkurven der beteiligten molekularen Zustände durch die Summe der inneren Energien der getrennten Stoßpartner und die Coulombsche Wechselwirkung dargestellt werden. Die Autoionisationswahrscheinlichkeit eines instabilen Zustands ist unabhängig von der kinetischen Energie der Stoßpartner. Im Falle der Transferionisation ist die kinetische Energie notwendig, um den Übergang zu autoionisierenden Molekül- oder Atomzuständen zu induzieren. Die Autoionisationsrate ist energieabhängig, da die Aufenthaltszeit in dem instabilen Zustand durch die Stoßenergie festgelegt wird.

In Fig. 2.3 sind diabatische Potentialkurven schematisch dargestellt, die einlaufendes Quasimolekül und die über Prozeß I, II und III entstandenen Quasimoleküle beschreiben.

Der Energiedefekt ΔE_1 ergibt sich durch den Transfer eines Elektrons, entsprechend der Energiedefekt ΔE_2 durch den reinen Zweielektronentransfer ohne Ablauf einer Autoionisation. Die Potentialkurven der Molekülzustände werden bei großen Abständen (einige a_0) durch die Coulombsche Wechselwirkung angenähert. Der Kreuzungsabstand der so definierten diabatischen Kurven kann für Ein- und Zweielektronentransfer berechnet werden.

$$\frac{R_1}{a_0} = \frac{27.22(q-1)}{\Delta E_1/\text{eV}} \quad (2.19)$$

(Eielektronentransfer)

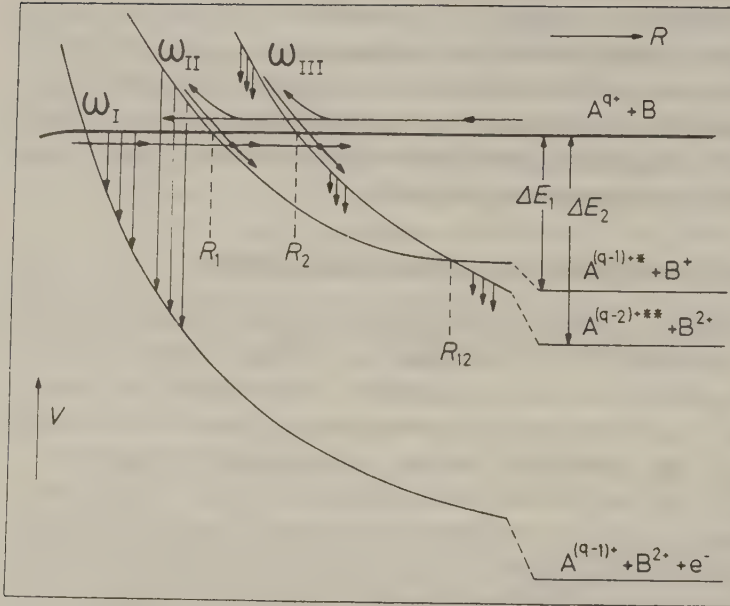


Fig. 2.3 Potentialkurvenschema zur Transferionisation über Prozeß I, II und III für Ladungszahlen des Primärons $q \geq 4$.

$$\frac{R_2}{a_0} = \frac{27.22(q-2) \cdot 2}{\Delta E_2 / \text{eV}} \quad (2.20)$$

(Zweielektronentransfer)

$$\frac{R_{12}}{a_0} = \frac{27.22(q-3)}{(\Delta E_2 - \Delta E_1) / \text{eV}} \quad (2.21)$$

Der Kernabstand R_{12} gibt die Kreuzung der Potentialkurven der durch Elektronentransfer gebildeten Quasimoleküle an ($q \geq 4$). Im Falle höher geladener Projektilionen ist meist folgende Beziehung erfüllt:

$$R_{12} \gg R_2 > R_1 \quad (2.22)$$

Zunächst werden mit dem Landau-Zener-Formalismus^{22,23} die Elektronentransferreaktionen an den Kreuzungspunkten R_1 und R_2 berechnet. Die Wechselwirkung der gebildeten Molekülzustände nach dem Elektronentransfer im Bereich R_{12} kann vernachlässigt werden, da

die Stoßpartner bei diesem Kreuzungsradius sehr weit voneinander entfernt sind und die Kopplungsstärke exponentiell mit R abnimmt.

In das Potentialkurvenschema (Fig. 2.3) ist der durch Autoionisation entstehende Endzustand $A^{(q-1)+} + B^{2+} + e^{-}$ eingezeichnet. Dar- gestellt ist die Potentialkurve für $A^{(q-1)+} + B^{2+}$, d.h. die kine- tische Energie ε des emittierten Elektrons ist gleich Null gesetzt. Oberhalb dieser Grenzkurve schließt sich ein Kontinuumsbereich für $\varepsilon \neq 0$ an. Die Landau-Zener-Wahrscheinlichkeit p_j dafür, daß das Quasimolekül nach Überschreiten des Kreuzungsradius R_j auf der ursprünglichen diabatischen Potentialkurve verbleibt, ergibt sich zu (siehe Abschnitt 2.2):

$$p_j = \exp\left(-\frac{v_j'}{v_R}\right) \quad (2.23)$$

mit

$$v_j' = \frac{4\pi^2 H_{ki}^{(j)}}{\hbar^2 \cdot b_j}$$

v_R : radiale Relativgeschwindigkeit der Kerne

Der Index j gibt die Nummer des Kreuzungspunktes an und legt die wechselwirkenden Zustände fest. Um die Autoionisation der besetz- ten quasimolekularen Zustände zu beschreiben, werden Zerfallsfak- toren $\omega_k(R)$ definiert. Der Index k kennzeichnet die zuvor beschrie- benen Prozesse I, II, III. Ein Teilchenfluß $J = 1$, der aus gleich- artigen Quasimolekülen ($A^{q+} + B$) besteht, liege im Eingangskanal vor. Während des Stoßes wird der Teilchenfluß durch verschiedene Reakti- onen aufgespalten in Teilströme, die sich aus dem ursprünglichen und den gebildeten neuen Quasimolekülen zusammensetzen. Die Faktoren $\omega_k(R)$ geben an, auf welchen Teil der als Funktion von R vorlie- gende Teilchenstrom entlang der klassischen Trajektorie abnimmt durch einen Autoionisationsprozeß. Nur für Abstände R kleiner R_1 sind die Faktoren $\omega_I(R)$ und $\omega_{II}(R)$ von Null verschieden, da sie die molekulare Autoionisation beschreiben, welche nur bei star- ker Annäherung beider Stoßpartner möglich ist; $\omega_{III}(R)$ dagegen beschreibt die atomare Autoionisation und ist daher für alle R ungleich Null.

Sind die Wahrscheinlichkeiten p_j für den Elektronentransfer bekannt und beschreibt man die Autoionisation durch die Faktoren ω_k , so können Transferionisationswahrscheinlichkeiten p_k berechnet werden. Für Prozeß I, die direkte molekulare Transferionisation, findet man:

$$p_I = p_1 \cdot p_2(1-\omega_I). \quad (2.24)$$

Für die indirekte (zweistufige) molekulare Transferionisationswahrscheinlichkeit erhält man (Prozeß II):

$$p_{II} = p_2(1-p_1)(1-\omega_{II}) \quad (2.25)$$

Die Wahrscheinlichkeit für den Ablauf von Prozeß III ergibt sich zu:

$$\begin{aligned} p_{III} = & (1-p_2)(1-(1-p_2)\omega_{III}) \\ & + (1-p_2)(1-p_1)^2 p_2 \cdot \omega_{II} \\ & + (1-p_2)p_2 \cdot p_1^2 \omega_I \end{aligned} \quad (2.26)$$

Die Abnahmefaktoren ω_k berücksichtigen die kurzen Lebensdauern autoionisierender Zustände. $W_k(R)$ sei die Wahrscheinlichkeit für den Zerfall autoionisierender Zustände (siehe Ref. 32). Dann gilt:

$$\omega_k(\rho, R_j(t)) = \exp\left\{-\int_{-t_j}^{+t_j} W_k(R) dt\right\} \quad (2.27)$$

Hierzu ist t_j die Zeit, die vom Passieren des Kreuzungsabstands R_j bis zur kleinsten Annäherung der Stoßpartner ($t = 0$) vergeht. Aus diesem Grund ist ω_k eine Funktion des Stoßparameters ρ .

Die Berechnung von $W_k(R)$ erfolgt über molekulare Wellenfunktionen ψ_A und ψ_B . Die Wellenfunktionen ψ_A und ψ_B beschreiben die am Transferionisationsprozeß beteiligten Elektronen (Nummerierung: Elek-

tron 1 und 2) im Feld der Teilchenrümpfe von A und B (Zweizentrensystem). Der Gesamtzustand des Quasimoleküls wird durch das Produkt dieser Zustandsfunktionen dargestellt. Die Übergangswahrscheinlichkeit im Prozeß I ergibt sich zu:

$$W_I(R) = 2\pi |\langle \psi_A(1) \psi_E(2) | \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0 r_{12}} | \psi_B(1) \psi_B(2) \rangle|^2 \cdot g_f \quad (2.28)$$

Hier sei ψ_E die Kontinuumswellenfunktion des emittierten Elektrons. Der Wechselwirkungsoperator zwischen den Zuständen ist die Coulombsche Wechselwirkung der Elektronen 1 und 2, g_f ist die Zustandsdichte des durch Autoionisation entstandenen Systems.

Die Autoionisation des Zwischenzustandes in Prozeß II läuft mit der Wahrscheinlichkeit $W_{II}(R)$ ab.

$$W_{II}(e) = 2\pi |V_{II}^{(1)} + V_{II}^{(2)}|^2 \cdot g_f$$

mit
$$V_{II}^{(1)} = \langle \psi_A(1) \psi_E(2) | \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0 r_{12}} | \psi_{A^*}(1) \psi_B(2) \rangle \quad (2.29)$$

$$V_{II}^{(2)} = \langle \psi_A(1) \psi_E(2) | \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0 r_{12}} | \psi_B(1) \psi_{A^*}(2) \rangle$$

Der Term $V_{II}^{(1)}$ beschreibt den Übergang eines bei Teilchen B gebundenen Elektrons ins Kontinuum. Im zweiten Ausdruck $V_{II}^{(2)}$ ist folgendem möglichen Reaktionsablauf Rechnung getragen:

Gleichzeitig mit der Emission eines Elektrons vom Ion $A^{(q-1)+*}$ wird ein Elektron von Teilchen B zum Teilchen A transferiert, so daß der beschriebene Endzustand entsteht.

Die Wahrscheinlichkeiten W_I und W_{II} sind nur von Null verschieden, wenn die wechselwirkenden Molekülzustände gleiche Symmetrie haben (Λ , S identisch für beide Zustände, S: Gesamtspin).

Im Prozeß III wird die Autoionisation durch die Übergangswahrscheinlichkeit W_{III} charakterisiert.

$$W_{III}(R) = 2\pi |\langle \psi_A(1) \psi_E(2) | \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0 r_{12}} | \psi_{A^{**}}(1) \cdot \psi_{A^{**}}(2) \rangle|^2 \cdot g_f \quad (2.30)$$

Die Wahrscheinlichkeit W_{III} kann näherungsweise R-unabhängig abgeschätzt werden (siehe Ref. 33) zu:

$$W_{III} \sim 10^{13} \dots 10^{14} \text{ s}^{-1} \quad (2.31)$$

Die Berechnung der Wahrscheinlichkeiten W_I und W_{II} erfolgt mit Wellenfunktionen ψ_A und ψ_B , die ein Zweizentren-System mit zwei Elektronen beschreiben (Ref. 32). Bei Kernabständen, die in der Größenordnung der Durchmesser isolierter Atome sind, erhält man für die Zerfallswahrscheinlichkeiten

$$W_{I,II} \sim 10^{15} \dots 10^{16} \text{ s}^{-1} \quad (2.32)$$

Folgender analytischer Ausdruck zeigt die R-Abhängigkeit von $W_{I,II}$

$$W_{I,II} = B_{I,II} \exp(-\alpha_{I,II} \cdot R) \quad (2.33)$$

$B_{I,II}$: Amplitudenparameter

$\alpha_{I,II}$: Prozeßparameter

Der Wirkungsquerschnitt, berechnet mit den Wahrscheinlichkeiten p_j und W_k , für die Prozesse I, II und III ist in Figur 2.4 als Funktion der Radialgeschwindigkeit v_R zu sehen.

Die Relevanz verschiedener Reaktionsmechanismen in bestimmten Geschwindigkeitsbereichen wird im Bild deutlich. Der Prozeß II hat große Bedeutung im Bereich zwischen 10^6 bis 10^7 cm s^{-1} . Direkte Transferionisation (Prozeß I) sollte nur bei hohen Stoßgeschwindigkeiten, wenn die beiden anderen Prozesse unwahrscheinlich werden, eine Rolle spielen.

Niehaus¹⁰ vergleicht Messungen mit theoretischen Ergebnissen, die unter Verwendung optischer Potentiale gewonnen werden. Optische Potentiale unterscheiden sich von den Coulombpotentialen, die die beschriebenen Potentialkurven bestimmen, durch einen zusätzlichen Imaginärteil, der die Absorption oder Emission eines Elektrons aus dem oder in das Kontinuum beschreibt.

$$\tilde{V} = V(R) - \frac{i}{2} \Gamma_E(R) \quad (2.34)$$

(siehe z.B. Hultszh et al.³⁵).

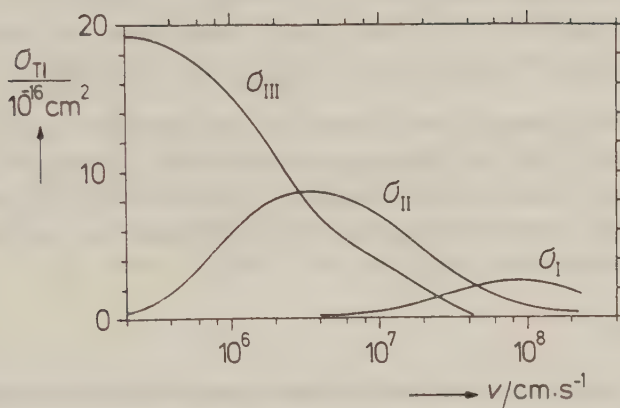


Fig. 2.4 Wirkungsquerschnitte für die Prozesse I, II und III als Funktion der Relativgeschwindigkeit v_R .
Folgende Parameter wurden festgelegt:

$$\begin{aligned} v_1' &= 3 \cdot 10^7 \text{ cm/s}, B_I = 6 \cdot 10^{12} \text{ s}^{-1}, \alpha_I = 5 \text{ \AA}^{-1} \\ v_2' &= 10^6 \text{ cm/s}, B_{II} = 2 \cdot 10^{13} \text{ s}^{-1}, \alpha_{II} = 4 \text{ \AA}^{-1} \\ W_{III} &= 5 \cdot 10^{13} \text{ s}^{-1} \end{aligned}$$

Der Index e kennzeichnet die Energie des emittierten Elektrons.
Die Wahrscheinlichkeit für den Zerfall eines in einem Stoßprozeß gebildeten Molekülzustandes über den Prozeß der Autoionisation ergibt sich zu:

$$P_{\text{Ionisation}}(v_R) = \int_T \frac{\Gamma(R)}{\hbar v_R(R)} \exp\left\{-\int_T \frac{\Gamma(R')}{\hbar v_R(R')} dR'\right\} dR \quad (2.35)$$

Die Integration erfolgt längs der klassischen Trajektorie T des Stoßprozesses.

Der Ablauf einer Transferionisationsreaktion ist mit einem Energiedefekt ΔE , wie in Abschnitt 1.1 beschrieben, korreliert. Diese Energie ΔE wird aufgeteilt auf stoßende Ionen und emittierte Elektronen während des Stoßes.

$$\Delta E = \Delta E_{\text{ION}} + \epsilon \quad (2.36)$$

Die Größe der Elektronenenergie ϵ ist stark vom Abstand R , bei dem die Emission des Elektrons erfolgt, abhängig. Erwartet werden daher Energieverteilungen $\dot{N}(\epsilon)$ für emittierte Elektronen und korrespondierende Verteilungen für die Ionen $\dot{N}(\Delta E_{\text{ION}})$ ($\dot{N}$: Zählrate).

Ein Vergleich von gemessenen Energieverteilungen mit Zerfallswahrscheinlichkeiten, die mit optischen Potentialen berechnet wurden, erlaubt es, die Parameter der komplexen Potentiale $\tilde{V}$ festzulegen; insbesondere ist eine Abschätzung der Lebensdauer von molekularen Autoionisationszuständen möglich ($\tau \sim 10^{-14} \dots 10^{-15}$ s).

2.4 Stoßdynamik

Elektroneneinfangreaktionen werden experimentell meist in Strahl - experimenten untersucht. Ein q -fach geladenes Ion mit kinetischer Energie E_1 wird auf ein im Laborsystem ruhendes Targetteilchen ($E_2 = 0$) geschossen.

Im Experiment sind folgende Parameter meßbar (siehe Fig. 2.5):

E_1 kinetische Energie der ungestreuten Primärionen

E_1' kinetische Energie der gestreuten Primärionen

E_2' kinetische Energie der gestreuten Targetteilchen (Recoilteilchen)

ϑ Streuwinkel der gestreuten Primärionen

φ Streuwinkel der gestreuten Targetteilchen

Die simultane Messung von drei der fünf Größen reicht zur vollständigen Beschreibung des Stoßes aus (siehe 36). Zur mathematischen Beschreibung muß der Energie- und Impulssatz herangezogen werden.

$$E_1 + E_2 = E_1' + E_2' - \Delta E \quad (2.37)$$

$$\vec{p}_1 + \vec{p}_2 = \vec{p}_1' + \vec{p}_2' \quad (2.38)$$

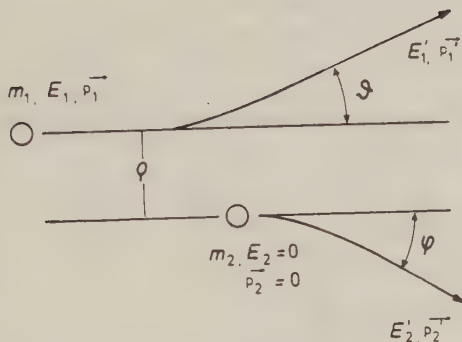


Fig. 2.5 Schematische Darstellung des Stoßprozesses

Der Energiedefekt ΔE (definiert in Abschnitt 1.1, Gleichung 1.2) berücksichtigt die Änderung der gesamten inneren Energie des Zweiteilchensystems. Die Bestimmung des Energiedefekts ΔE ist Ziel der experimentellen Untersuchung. Mit Hilfe der Translationsspektroskopie können folgende Parameter simultan gemessen werden:

a) Messung der gestreuten Projektile:

$$E_1, E_1', \vartheta$$

b) Messung der gestreuten Targetteilchen:

$$E_1, E_2', \varphi$$

Eine nähere Diskussion der Methode a) und b) wird im folgenden Teil vorgenommen. Aus Energie- und Impulssatz erhält man folgenden Zusammenhang:

$$\Delta E = E_1'(\gamma+1) + E_1(\gamma-1) - 2\gamma(E_1'E_1)^{1/2} \cos \vartheta$$

mit
$$\gamma = \frac{m_1}{m_2}.$$

(2.39)

Im Experiment wird die Energie E_1 und E_1' gemessen. Unmittelbar zugänglich ist daher die Größe Q

$$Q = E_1' - E_1 \quad (2.40)$$

Mit Gleichung (2.38) findet man im folgenden eine Beziehung für den Q -Wert:

$$Q = \frac{2\gamma}{(\gamma+1)^2} \left\{ \left(1 + \frac{1}{\gamma}\right) \frac{\Delta E}{2E_1} - 1 - \gamma \sin^2 \vartheta \right. \\ \left. \pm \cos \vartheta \cdot \left[1 - \gamma^2 \sin^2 \vartheta + (1+\gamma) \frac{\Delta E}{E_1} \right]^{1/2} \right\} \cdot E_1 \quad (2.41)$$

Gleichung (2.40) kann durch einen einfachen Ausdruck ersetzt werden, wenn nur kleine Winkel $\vartheta \sim \sin \vartheta$ und $\Delta E/E_1 \ll 1$ zugelassen werden (siehe Ref. 36).

$$Q = \Delta E - \gamma \cdot E_1 \cdot \vartheta^2 \quad (2.42)$$

Für $\vartheta = 0$ erhält man in dieser Näherung $Q = \Delta E$.

Umladungsreaktionen laufen in der Regel mit sehr kleinen Streuwinkeln ab, da die Wechselwirkung bei großen Abständen in einem streifenden Stoß (siehe Ref. 37) erfolgt, so daß wenig Impuls ausgetauscht wird.

Die genaue Bestimmung von ΔE durch Messung des Wertes Q gelingt nur, wenn der Winkel ϑ hinreichend bekannt ist. Im Experiment wird jedoch immer ein Winkelbereich $\delta \vartheta$ erfaßt, der durch geometrische Abmessungen festgelegt ist. Einerseits kann dieser Sachverhalt Ursache dafür sein (wenn $\vartheta = 0$), daß gemessene Verteilungen $\dot{N}(A^{(q-1)+}) = f(Q)$ ($\dot{N}$ = Zählrate) eine Verbreiterung zu kleinen Q -Werten hin aufweisen (siehe Huber und Kahlert³⁸). Findet andererseits die Reaktion nur in einem sehr kleinen Winkelbereich statt, so werden bei der Anwendung hochauflösender Translationsspektroskopie scharfe Verteilungen $\dot{N}(A^{(q-1)+})$ erwartet, deren zugehörigen ΔE -Werte nach Gleichung (2.39) bzw. (2.41) berechnet werden, unabhängig vom experimentellen Winkelauflösungsvermögen.

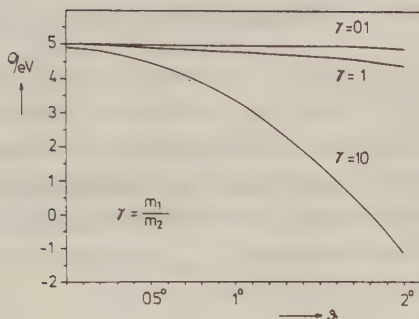


Fig. 2.6 Q-Wert als Funktion des Reaktionswinkels
 $E_1 = 500 \text{ eV}$, $\Delta E = + 5 \text{ eV}$, $\gamma = m_1/m_2$

In Figur 2.6 ist für typische Experimentdaten der Q-Wert aufgetragen gegen den Streuwinkel θ der Reaktion. Bei einer Projektilenergie von 500 eV und einem Energiedefekt von + 5 eV erwartet man schon bei kleinen Laborwinkeln θ große Unterschiede zwischen Q und ΔE . Ist das Projektilteilchen (m_1) leicht im Vergleich zum Targetteilchen (m_2), so wird auch bei Streuwinkeln bis zu einigen Grad ΔE gut durch den Meßwert Q wiedergegeben.

Es ist nötig (insbesondere für $\gamma > 1$) im Experiment den Winkelbereich $\delta\theta$, somit das Winkelauflösungsvermögen des Translationsspektrometers, möglichst klein zu wählen, um einzelne, energetisch eng benachbarte Reaktionskanäle eindeutig zu identifizieren.

Da Elektroneneinfangreaktionen bevorzugt mit sehr kleinen Streuwinkeln θ ablaufen, wird der Energiedefekt ΔE im Laborsystem hauptsächlich auf das gestreute schnelle Projektilteilchen übertragen. Die Methode a) hat aus experimenteller Sicht daher Vorteile gegenüber Methode b). Selbst bei ΔE -Werten von ~ 20... 30 eV erhält das Targetteilchen im Laborsystem lediglich einen Energiebetrag im meV-Bereich.

Liegen Transferionisationsreaktionen vor, so treten im Ausgangskanal drei Teilchen auf: Im Energiesatz und Impulssatz muß das emittierte Elektron mit kinetischer Energie ϵ berücksichtigt werden (siehe Gleichung 2.36)

$$E_1 + E_2 = E_1' + E_2' - (\Delta E_{\text{ION}} + \epsilon) \quad (2.43)$$

$$\vec{p}_1 + \vec{p}_2 = \vec{p}_1' + \vec{p}_2' + \vec{p}_e \quad (2.44)$$

Der Energiedefekt ΔE teilt sich auf die gebildeten Ionen (ΔE_{ION}) und das emittierte Elektron (ϵ) auf. Der Elektronenimpuls $\vec{p}_e$ ist bei kleinen Elektronenenergien ($\epsilon/E_1 \ll 1$) im Vergleich zum Ionenimpuls $\vec{p}_1'$ vernachlässigbar. Die Meßgröße Q_{ION} berechnet sich unter Verwendung von Gleichung (2.41) wie folgt

$$Q_{\text{ION}} = (\Delta E - \epsilon) - \gamma E_1 \beta^2. \quad (2.45)$$

Das Ionentranslationsspektrum liefert nicht unmittelbar den Energiedefekt $\Delta E(\epsilon = 0)$, da das emittierte Elektron die kinetische Energie ϵ besitzt. Mit bekannten atomaren Energieniveaus der nach dem Stoß vorliegenden getrennten Teilchen kann der Energiedefekt für $\epsilon = 0$ berechnet werden. Aus dem Ionenenergiedefekt ergibt sich danach die korrelierte Elektronenenergie. Die eindeutige Zuordnung schließt die Untersuchung der emittierten Elektronen ein, jedoch kann im Experiment das Ionentranslationsspektrum allein für die Interpretation ausreichen, wenn reine Elektronentransferreaktionen keine Erklärung der gemessenen Q -Werte liefern.

3. Experimentelle Anordnung

3.1 Beschreibung des Strahlengangs

Zur Messung von hochaufgelösten Ionentranslationsspektren wurde eine neue Apparatur aufgebaut. Im wesentlichen setzt sich der Aufbau aus vier Komponenten zusammen: der Primärstrahlerzeugung, der Massenselektion, dem Stoßzellenbereich und dem Translationsspektrometer. In Fig. 3.1 ist die Stoßapparatur schematisch dargestellt.

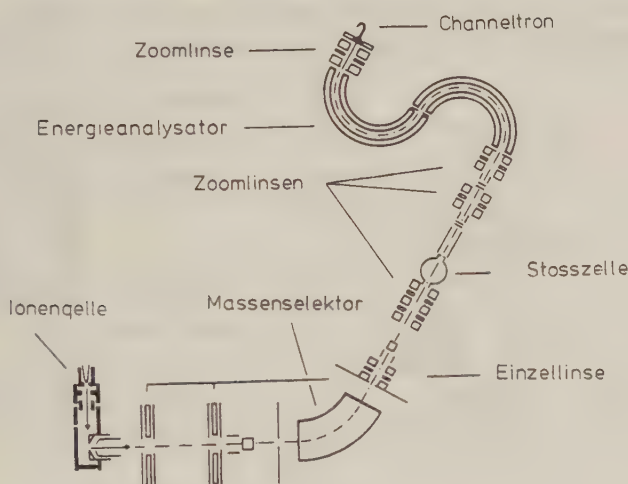


Fig. 3.1 Schematische Darstellung der Stoßapparatur

Der aus der Ionenquelle extrahierte Ionenstrahl wird über zwei Einzellinsen auf den Eingangsspalt des magnetischen Massenspektrometers fokussiert. Nach der Massenselektion im Magneten wird mit Hilfe einer weiteren Einzellinse der Ionenstrahl durch die Stoßzelle, die das Targetgas enthält, geschossen. Vor der Stoßzelle erhält der Ionenstrahl in einem Zoomlinsensystem die gewünschte Stoßenergie.

Sowohl die primären wie auch die in Vorwärtsrichtung gebildeten schnellen umgeladenen Ionen durchlaufen nach Austritt aus der Stoß-

zelle eine Driftstrecke, werden im Translationsspektrometer bez. ihrer kinetischen Energie analysiert und mit einem Channeltron (Kanalelektronen-Vervielfacher) nachgewiesen.

Das Translationsspektrometer besteht aus zwei vorgeschalteten Zoomlinse, zwei Kugelkondensatoren und einer nachgeschalteten Zoomlinse. In den folgenden Abschnitten werden die einzelnen Komponenten genauer beschrieben.

3.2 Ionenstrahlerzeugung

Die Ionen werden in einer Elektronenstrahlquelle erzeugt. Eine schematische Darstellung ist in Fig. 3.2 zu sehen.

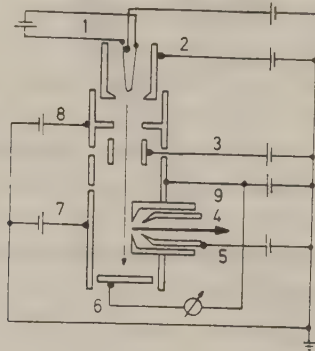


Fig. 3.2 Elektronenstrahlionenquelle
Schematische Darstellung der einzelnen Bauteile:

1. Haarnadelkathode (U_{Kathode})
2. Wehneltzylinder
3. Elektronenstrahllinse
4. Ionenextraktionsrichtung
5. Ionenextraktionsselektrode (U_{Ex})
6. Elektronenauffänger
7. Repellerelektrode (U_{Rep})
8. Elektronenextraktionsselektrode
9. Anode (U_{A})

Die aus einer direkt geheizten Wolframhaarnadelkathode emittierten Elektronen werden unter Verwendung geeigneter elektrostatischer Potentiale durch Wehneltzylinder (2) und Extraktionsselektrode (8)

zu einem Elektronenstrahl geformt. Mit einer Immersionslinse (Elektroden (8), (3), (9)) wird der Elektronenstrahl am Ionenextraktionsloch vorbei fokussiert und trifft auf den Elektronenauffänger (6). Die Repellerelektrode (7) bietet die Möglichkeit, den Elektronenstrahl elektrostatisch an das Ionenextraktionsloch zu schieben oder aber in Verbindung mit der Ionenextraktionselektrode ein geeignetes elektrisches Feld für optimale Ionenstrahlformierung zu erstellen. Die Ionenquelle ist zylindersymmetrisch aufgebaut (siehe Fig. 3.3).

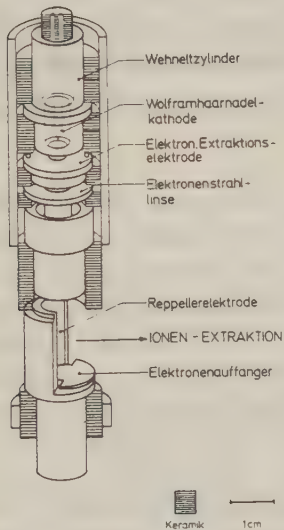


Fig. 3.3 Schaubild der Ionenquelle

Einzelne Elektroden sind durch Keramikzylinder und Keramikugeln (Al_2O_3) voneinander isoliert. Die Gesamtlänge der Ionenquelle beträgt etwa 90 mm. Ein typischer Potentialverlauf in der Quelle ist in Fig. 3.4 schematisch dargestellt.

Durch Veränderung des Kathodenpotentials (1) ist es im Experiment möglich, die Elektronenenergie zwischen 80 eV und etwa 1,5 keV einzustellen. Die erzeugten Elektronenströme liegen zwischen 0,1 mA und 4 mA. Haarnadelkathode und nachfolgender Wehneltzylinder sind nach Konzeptionen von Haine und Einstein³⁹ konstruiert. Der Wehneltzylinder hat die Aufgabe, die durch die Elektrode (8) extra-

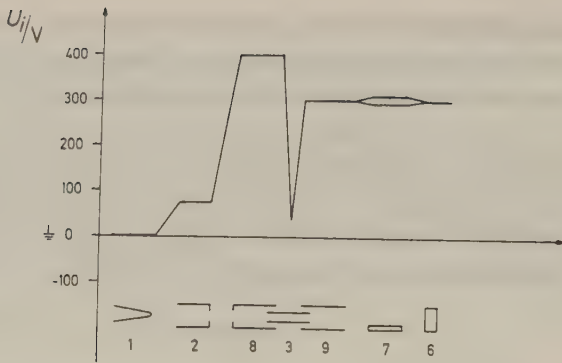


Fig. 3.4 Schematische Darstellung des Potentialverlaufs in der Elektronenstrahlionenquelle. Bezeichnung der Elektroden: siehe Nummerierung in Fig. 3.2.
Abgebildet ist der Verlauf für ein vorgegebenes Anodenpotential von $U_A = + 300$ V.

hierten Elektronen optimal in die Immersionslinse (Kombination von Elektrode (8), (3), (9)) zu fokussieren. Die typische Extraktionsspannung zwischen Kathode und Elektrode (8) beträgt 400 V im Experiment. Für die Haarnadelkathode (1) wird $\varnothing$ 0.3 mm thorierter Wolframdraht verwendet. Mit Gleichströmen zwischen 6 A und 7 A bei Spannungen von 4 V bis 5 V wird die Kathode geheizt. Die Bohrungen im Wehneltzylinder und in der Extraktionselektrode haben einen Durchmesser von 4 mm.

Die Immersionslinse (siehe 40) und die Repellerelektrode (7) sind wichtig, um Ionen in der Nähe des Ionenextraktionslochs zu bilden. Das Potential der Repellerelektrode wird etwa 10 V positiver ($U_A = + 300$ V) als das Anodenpotential eingestellt, um einen maximalen extrahierten Ionenstrom ($\sim 10^{-10}$ A) zu erzielen; wählt man dagegen das Repellerpotential (ca. 4 V) negativ im Vergleich zum Anodenpotential, so ist zwar der extrahierte Ionenstrom erheblich kleiner, aber die Energieschärfe des Ionenstrahls wird verbessert. Im einzelnen werden die Eigenschaften in Abschnitt 5.1 diskutiert.

Im Ionenquellenrezipienten herrscht ein Restgasdruck von etwa 10^{-6} Pa. Zur Erzeugung von Edelgasionen wird über ein Keramikrohr Gas direkt in den Ionenextraktionsbereich eingelassen. Die Gaszufuhr ist durch ein Dosierventil so eingestellt, daß der Gasdruck im Rezipienten

auf 10^{-4} Pa bis 10^{-3} Pa maximal ansteigt. Im Extraktionsbereich sollte der Gasdruck in derselben Größenordnung liegen, da eine gute Verbindung mit dem Rezipienten besteht.

Die erzeugten Ionen werden extrahiert durch ein elektrisches Feld, dessen räumlicher Verlauf durch die geometrische Form der Pierceelektrode und Anode bestimmt wird. Einen zusätzlichen Einfluß auf das Extraktionsfeld hat das Repellerpotential. Anode und Pierceelektrode sind zylindersymmetrisch geformt. Die Extraktionsbohrungen haben einen Durchmesser von 1 mm. Der Abstand der Elektroden beträgt ca. 5 mm. Dieses Extraktionssystem ist in Form und Abmessungen als Piercesystem⁴¹ angefertigt. Ein typischer Potentialverlauf entlang des Strahlführungssystems (Quelle-Massenselektor) ist in Fig. 3.5 zu sehen.

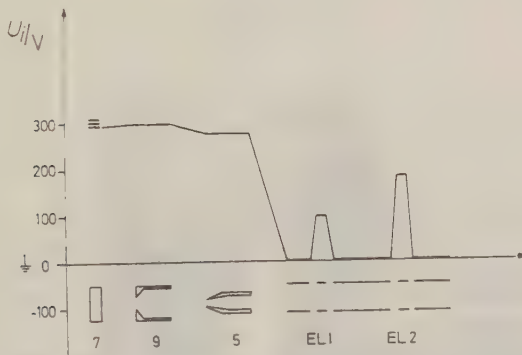


Fig. 3.5 Schematischer Potentialverlauf entlang des Strahlweges bis zur Massenselektion
7: Repellerelektrode, 9: Anode, 5: Pierceelektrode, EL 1/2: Einzel-linsen

Ionen können mit einer Potentialdifferenz von minimal 20 V zwischen Erzeugungsvolumen und Extraktionselektrode (Pierceelektrode) aus der Ionenquelle gezogen werden.

Die nachfolgende erste Elektrode der Einzellinse EL 1 ist mit dem Erdpotential fest verbunden. Die extrahierten Ionen werden - nachdem sie die Pierceelektrode passiert haben - beschleunigt. Einzel-

linse EL 1 dient zur Fokussierung des divergenten Ionenstrahls durch die zweite Einzellinse EL 2.

Technische Konstruktionen sowie zugehörige Brennweiten der Einzellinsen für vorgegebene Potentialdifferenzen der Elektroden sind von Wilson und Brewer⁴⁶ oder Harting und Read⁴² angegeben.

Die Einzellinse EL 2 ist in den Abmessungen mit EL 1 identisch und hat die Aufgabe, den Ionenstrahl auf den 0.5 mm breiten Eingangsspalt des Massenselektors abzubilden.

Der Aufbau Ionenquelle-Einzellinsen-Spalt ist optisch justiert worden; um aber dennoch kleine Korrekturen in der Ionenstrahlrichtung vornehmen zu können, sind sogenannte Ablenkplatten für die vertikale und horizontale Richtung direkt hinter der Einzellinse EL 2 eingebaut (Fig. 3.1).

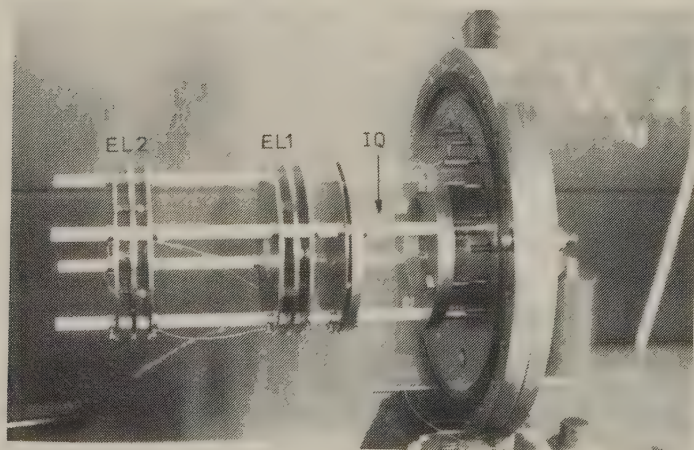


Fig. 3.6 Foto des Aufbaus: Ionenquelle (IQ, entfernt), Einzellinsen EL 1 und EL 2.

Jeweils gegenüberliegende Platten (Abstand 20 mm, Länge 40 mm) werden symmetrisch gegen das Erdpotential auf negatives und positives Potential gelegt.

In Fig. 3.7 ist der gemessene Ionenstrom (Argonionen und Restgas-
ionen) auf der Eingangsblende des Massenselektors als Funktion der
horizontalen Ablenkplattenspannung dargestellt.

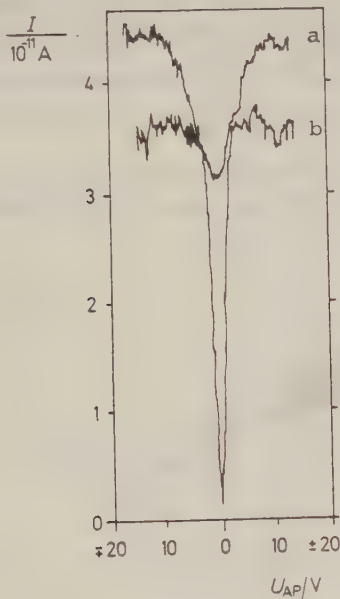


Fig. 3.7 Ionenstrom auf der Eingangsblende des Massenselektors als Funktion
der horizontalen Ablenkspannung U_{AP}
a) Einzellinse EL 2 defokussiert
b) Einzellinse optimal eingestellt

Bei optimaler Einstellung von EL 1 und EL 2 gelingt es, etwa 90 %
des Ionenstromes durch die 0.5 mm breite Blendenöffnung zu fokus-
sieren. Eine leichte Defokussierung hat zwar eine bessere Transmis-
sion der Linse selbst zur Folge, jedoch ist der durch die Blende
geschossene Ionenstrom kleiner.

Der Ionenstrom setzt sich aus Ionen verschiedener Ladungszustände
des eingelassenen Edelgases zusammen sowie aus Restgasionen. Im
magnetischen Massenselektor wird die Strahlzusammensetzung analy-
siert.

3.3 Massenselektor

Das Massenspektrometer besteht aus einem magnetischen Sektorfeld, in das die Ionen durch den Eingangsspalt hineingeschossen werden. Verwendet wird ein von der Firma Brucker hergestellter Aufbau mit folgenden technischen Daten (siehe Fig. 3.8):

Ablenkwinkel	60°
Sollbahnradius	200 mm
Polschuhabstand	30 mm
Abbildungsweite	
S ₁	400 mm

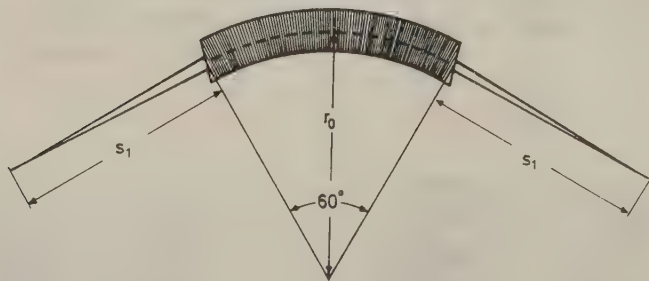


Fig. 3.8 Magnetischer Massenselektor, Polschuhe schraffiert

In einem Laufrohr aus Edelstahl werden die Ionen durch das magnetische Feld abgelenkt. Polschuhkanten sind so konstruiert, daß magnetische Feldverläufe die Abbildungsweiten garantieren. Enge⁴⁷ beschreibt die Zusammenhänge zwischen Abbildungsweiten und magnetischen Feldverläufen.

Der Zusammenhang zwischen magnetischer Induktion B und Ionensorte ergibt sich zu

$$B^2 = \frac{2U_A}{r_o^2} \frac{m}{q} \quad (3.1)$$

U_A : Anodenpotential bez. Erde

m : Ionenmasse

q : Ionenladungszahl

Da das Ionenlaufrohr mit dem elektrostatischen Erdpotential verbunden ist, kann die kinetische Energie der Ionen durch das Anodenpotential ausgedrückt werden ($E \approx U_A \cdot q \cdot e$). Im Experiment ist die Sollbahn vorgegeben. Voneinander getrennt werden können nur Ionensorten, die sich im Quotienten q/m unterscheiden. Je nach Ionensorte muß im Experiment eine magnetische Induktion des Elektromagneten von maximal $0.2 \frac{Vs}{m^2}$ eingestellt werden.

In Fig. 3.9 ist ein typisches Massenspektrum zu sehen, das mit dem Nachweissystem (siehe Abschnitt 3.6) aufgenommen wurde.

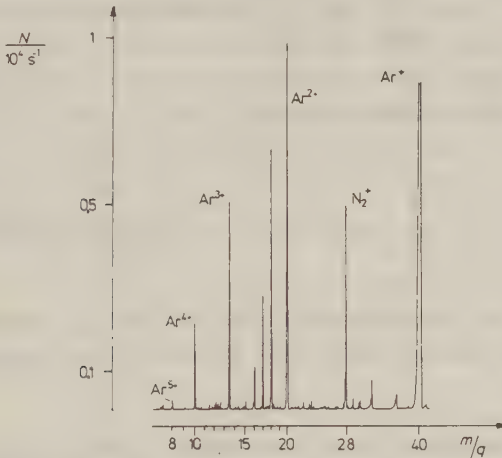


Fig. 3.9 Ar-Massenspektrum
 $U_A = 600$ V, Elektronenenergie $E_{el} = 600$ eV

Um einen selektierten parallelen Ionenstrahl (Winkeldivergenz vernachlässigbar) zu erzeugen, ist eine weitere Einzellinse (konstruiert nach Harting und Read⁴²) direkt hinter dem Ausgangsspalt eingebaut. Weitere elektrostatische Ablenkplatten erlauben feine Korrekturen in der Strahlrichtung, um den Ionenstrahl durch die Stoßzelle in das Translationsspektrometer zu führen (siehe Fig. 3.1). Typischerweise liegt der Ionenstrom für Ar^+ -Ionen in der Größenordnung von 10^{-10} A.

3.4 Stoßzellenbereich

Zum Stoßzellenbereich gehören ein Immersionslinsensystem, die Stoß-

zelle selbst und eine anschließende Driftstrecke. In Fig. 3.10 sind die einzelnen Elemente schematisch dargestellt.

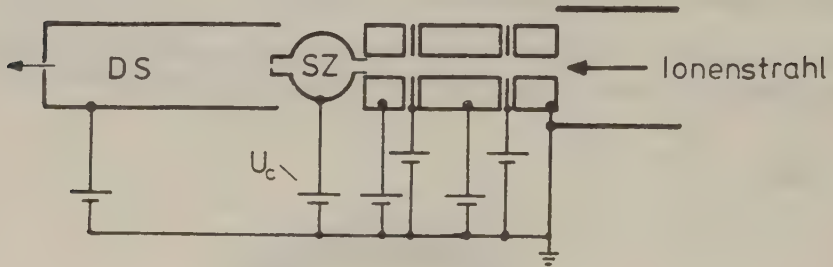


Fig. 3.10 Stoßzellenbereich mit vorgeschalteten ionenoptischen Zoomlinsen
SZ: Stoßzelle, DS: Driftstrecke

Die Immersionslinsen stellen ein Zoomlinsensystem dar. In Abschnitt 3.5 werden die ionenoptischen Eigenschaften dieser Linsen ausführlich besprochen.

Mit Hilfe dieses Systems kann die kinetische Energie des abzubildenden Ionenstrahls geändert werden. Im Experiment gestattet dieses Linsensystem z.B. eine Verzögerung zweifachgeladener Argonionen von 600 eV bei Austritt aus dem Massenselektor auf ca. 100 eV in der Stoßzelle. Mit dieser Abbremsung ist eine Abnahme der Ionenzählrate um einen Faktor fünf verbunden.

Die zylindersymmetrische Stoßzelle ist potentialfrei aufgebaut, so daß eine zusätzliche elektrostatische Verzögerung oder Beschleunigung der Ionen vor Eintritt in die Stoßzelle möglich ist. In Vorwärtsrichtung besitzt die Stoßzelle ein 1 mm $\varnothing$ Ausgangsloch. Der Ionenstrahl durchläuft in der Stoßzelle eine Strecke von ca. 51 mm. Ein Restgasdruck von 10^{-5} Pa wird in der Stoßzelle erreicht. Über ein Dosierventil wird das Targetgas in die Stoßzelle eingelassen. Ein Ionisationsmanometer, das oberhalb des Strahlweges in der Stoßzelle installiert ist, gestattet die Messung des Targetgas-

drucks. Typische Drucke von 10^{-2} bis 10^{-3} Pa gewährleisten die Erfüllung der Einzelstoßbedingung für Reaktionswirkungsquerschnitte von einigen 10^{-15} cm². An die Stoßzelle schließt sich eine Driftstrecke (DS) von etwa 80 mm Länge an. Das Eingangsloch (1 mm Ø) des Translationsspektrometers am Ende der Driftstrecke legt mit den anderen Abmessungen des Stoßzellenbereichs die geometrische Winkelakzeptanz von 0.7° fest.

3.5 Zoomlinsen

Das ionenoptische System vor der Stoßzelle und vor den Kugelkondensatoren des Translationsspektrometers besteht aus Immersionslinsen. Diese Linsen werden als ionenoptische Zoomlinsen betrieben. Bei ortsfesten Gegenstands- und Bildweiten (ähnlich: optische Zoomlinsen), die durch Lochblenden festgelegt sind, wird ein Ionenstrahl der kinetischen Energie E_1 auf eine Energie E_3 beschleunigt oder verzögert (Fig. 3.11).

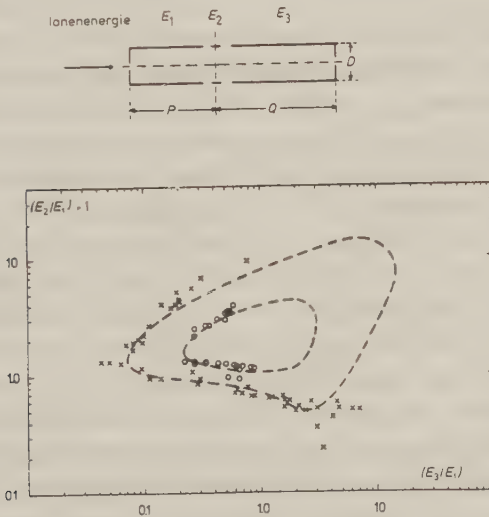


Fig. 3.11 Vergleich experimenteller und theoretischer Zoomlinsenkurven
 Gestrichelte Kurven: Theorie nach Harting und Read⁴²
 Experimentelle Werte: x $P/D = 4$, $Q/D = 2$; o $P/D = \infty$, $Q/D = 4$

Die optimale Fokussierung des Ionenstrahls gelingt nur, wenn das Beschleunigungs- oder Verzögerungsverhältnis E_3/E_1 richtig korre-

liert mit E_2 ist. E_2 ist die kinetische Energie der Ionen, die das Potential der Mittelelektrode treffen.

Harting und Read⁴² haben über Trajektorienrechnungen den Zusammenhang zwischen den genannten Quotienten für verschiedene leicht herstellbare Linsengeometrien bestimmt. In Fig. 3.11 entsprechen die gestrichelten Kurven theoretischen Daten. Die äußere Kurve gilt für eine Linse mit einer reduzierten Gegenstandsweite $P/D = 4$ und einer Abbildungsweite $Q/D = 2$. D ist der Durchmesser der zylindersymmetrischen Elektroden (siehe Fig. 3.11). Das Potential auf der Mittelelektrode kann für eine Fokussierung so gewählt werden, daß die Ionen entweder beschleunigt oder verzögert werden. Ferner zeigt die geschlossene Kurve, daß die Beschleunigung oder Verzögerung der Ionen in Verbindung mit einer Fokussierung nur gelingt für einen festgelegten Verzögerungs- oder Beschleunigungsbereich:

$$0.08 \leq E_3/E_1 \leq 15 \quad (3.2)$$

Die Bildfehler der Zoomlinse verhindern jenseits dieser Grenzen eine wirksame Abbildung. Elektrostatische Linsen der beschriebenen Art sind in den Strahlengang eingebaut. Experimentell untersucht wurde zunächst die Zoomlinse des Translationsspektrometers unmittelbar vor dem Channeltron (siehe Fig. 3.1). Wegen der Abbildungseigenschaften des Kugelkondensators (siehe Abschnitt 3.6 - Translationsspektrometer) liegt im Eingangsloch der Zoomlinse ein Fokus vor. Der Durchmesser der Linsenelektroden beträgt 10 mm, die Gegenstandsweite $p = 40$ mm und die Abbildungsweite $Q = 20$ mm. Bei fester Energie E_1 (zwischen 100 und 600 eV) wurde im Experiment die Ionen-zählrate optimiert für eine vorgegebene Energie E_3 (Fig. 3.11). Die fokussierten Ionen werden auf dem Weg von der Ausgangselektrode der Zoomlinse zur Kathode des Channeltrons auf die Energie von 1.5 keV beschleunigt, um gleiche Sekundärelektronenauslösewahrscheinlichkeiten zu garantieren. Experimentell ermittelte Daten (x) zeigen eine gute Übereinstimmung mit der Theorie. Im Rahmen der Unsicherheiten konnten keine Abweichungen für verschiedene Ionen gefunden werden (benutzt wurden einfach-, zweifach- und dreifachgeladene Ionen). Die experimentell maximal erzielbare Verzögerung ergibt sich zu

$$E_3/E_1 \sim 0.045 \quad (3.3)$$

Aus apparativen Gründen konnte nicht der gesamte theoretische Datenbereich verifiziert werden (Spannungsversorgungen, elektrische Vakuumdurchführungen).

Eine weitere Untersuchung ergab für die Zoomlinse ZL 2, die unmittelbar vor dem Kondensatorsystem angebracht ist (siehe Fig. 3.13, Abschnitt 3.6), Meßdaten, die mit der inneren theoretischen Kurve in Fig. 3.11 in Einklang sind. Bei diesen Messungen wurde die Zoomlinse ZL 1 (siehe Fig. 3.13, Abschnitt 3.6) nicht benutzt. Zur inneren theoretischen Kurve gehören die Parameter $P/D = \infty$, $Q/D = 4$. Offensichtlich produziert die Einzellinse unmittelbar hinter dem Massenselektor in Kombination mit dem Zoomlisensystem vor der Stoßzelle einen Parallelionenstrahl.

Neben der Festlegung der Betriebsdaten ist die relative Transmission $\dot{N}/N_{\max}$ der Zoomlinsen untersucht worden (Fig. 3.12). In Fig. 3.12 ist die relative Transmission der Zoomlinse ZL 3 als Funktion des Quotienten E_3/E_1 dargestellt.

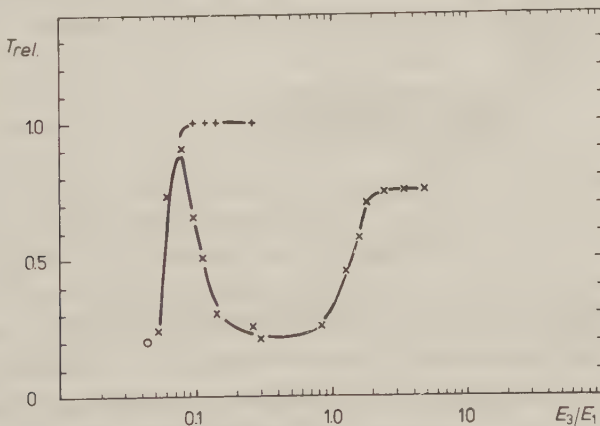


Fig. 3.12 Relative Transmission $\dot{N}/N_{\max}$ der verwendeten Zoomlinsen ZL 3

x: $E_2 < E_1$; +: $E_2 > E_1$, $E_1 = 350$ eV

Bedeutsam für den Betrieb des Translationsspektrometers ist, daß die verwendeten elektrostatischen Zoomlinsen in einem Verzögerungsbereich eine nahezu konstante relative Transmission T_r haben.

$$T_r = \text{const für } 0.2 < E_3/E_1 < 1 \quad (3.4)$$

In der Nähe der Betriebsgrenzen ändert sich die Transmission jedoch sehr rasch.

3.6 Translationsspektrometer

3.6.1 Beschreibung der einzelnen Elemente

Das Translationsspektrometer setzt sich aus drei Zoomlinsen, zwei Kugelkondensatoren und einem Channeltron zusammen (Fig. 3.13).

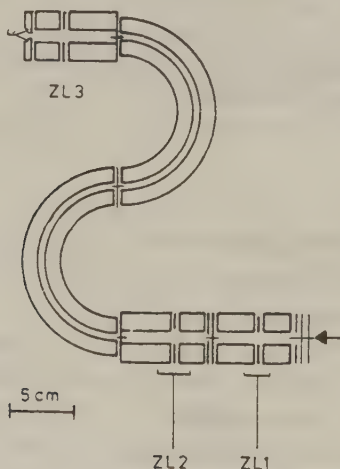


Fig. 3.13 Schematische Darstellung des Translationsspektrometers
ZL: Zoomlinse

Vor und zwischen den Zoomlinsen ZL 1 und ZL 2 sind zwei Ablenkplattenpaare eingebaut, die eine Richtungsfeinkorrektur des Ionenstrahls ermöglichen. Die ionenoptischen Eigenschaften des Kondensatorsystems können leicht berechnet werden (siehe Ref. 43). Ein 180° Kugelkondensator hat fokussierende Eigenschaften sowohl in radialer als auch in vertikaler Richtung, so daß eine Abbildung des Eingangslochs auf das Ausgangsloch ionenoptisch stattfindet. Eine detaillierte Beschreibung der Eigenschaften dieser Systeme ist in Ref. 43 wiedergegeben.

Die Bahn positiver Ionen im Kondensator hängt bei vorgegebener Ladung im wesentlichen nur von dem Verhältnis der Teilchenenergie zur Spannung U_{EA} zwischen den Kondensatorplatten ab. Sogenannte Bildfehler des Systems haben eine Bedeutung, wenn der Ionenstrahl nicht tangential zum Sollbahnradius in den Kondensator eingeschossen wird. Im Experiment ist dies immer dann der Fall, wenn im Eingangsloch des Kondensators durch vorgeschaltete elektrostatische Linsen ein Ionenfokus gebildet wird, um möglichst viele Ionen im elektrostatischen Sektorfeld zu analysieren.

Eine wichtige Eigenschaft des Spektrometers ist das Energieauflösungsvermögen R_{Kond} des Kondensatorsystems:

$$R_{Kond} = \frac{E_0}{\delta E_{Kond}} \quad (3.5)$$

Hier ist E_0 die kinetische Energie der Ionen auf der Sollbahn und δE die energetische Breite des Ionenstrahls, der noch durch das Ausgangsloch des Kondensators fokussiert wird. Ein 180° Kugelkondensator hat näherungsweise folgendes reziprokes Auflösungsvermögen:

$$\frac{1}{R_{Kond}} = \frac{4r_0}{s+s'} + 2\alpha^2 \quad (3.6)$$

Es bedeuten: r_0 Sollbahnradius, s und s' Ein- und Ausgangslochradius α Divergenzwinkel des Ionenstrahls. Das Auflösungsvermögen des Kondensators ist eine apparative Konstante. Für zwei hintereinandergeschaltete identische Kondensatoren wie im verwendeten Translationspektrometer läßt sich zeigen, daß eine Verdopplung des Auflösungsvermögens erfolgt. Die geometrischen Abmessungen des angefertigten Kondensatorsystems sind der Fig. 3.14 zu entnehmen.

Das Energieauflösungsvermögen des Kondensatorsystems berechnet sich zu

$$R = 240 \quad (3.7)$$

Der theoretische Zusammenhang zwischen Energie transmittierter Ionen (E_{Trans}) und der Kondensatorspannung U_{EA} ergibt sich nach einfachen elektrostatischen Überlegungen:

$$E_{\text{Trans}} = q \cdot e \cdot \frac{r_a \cdot r_i}{r_a^2 - r_i^2} U_{EA} \quad (3.8)$$

r_i : Radius der Innenelektrode

r_a : Radius der Außenelektrode

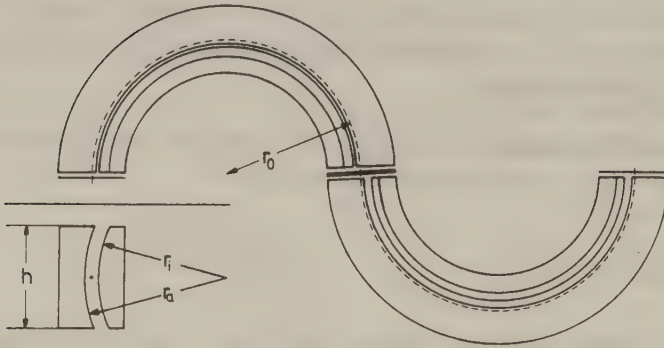


Fig. 3.14 Schematische Darstellung des Kondensatorsystems
 $r_o = 60 \text{ mm}$, $r_i = 57 \text{ mm}$, $r_a = 63 \text{ mm}$, $h = 45 \text{ mm}$

Die Berücksichtigung der geometrischen Abmessungen liefert:

$$\frac{E_{\text{Trans}}}{eV} = 4.9875 \left(\frac{U_{EA}}{V} \right) \cdot q \quad (3.9)$$

q : Ladungszahl der Ionen

Damit der Ionenstrahl beide Kondensatoren durchläuft, ist eine Verstimmung der Spannungen U_{EA1} und U_{EA2} nötig. Es ergibt sich experimentell:

$$\frac{U_{EA1}}{U_{EA2}} = (1.04 \pm 0.01) \quad (3.10)$$

Dieser Sachverhalt (3.10) ist auf einen etwas verschiedenen geometrischen Aufbau beider Kondensatoren, der durch Fertigungstoleranzen bedingt ist, zurückzuführen. Der untersuchte Bereich der Spannungen U_{EA} liegt zwischen 10 V und 300 V.

Experimentell wird gefunden

$$\frac{E_{\text{Trans}}}{\text{eV}} = (4.96 \pm 0.05) \frac{U_{\text{EA1}}}{V} \cdot q \quad (3.11)$$

Die Bestimmung der kinetischen Energie transmittierter Ionen über Gleichung (3.11) ist bei einer typischen Energie $E_{\text{Trans}} = 200 \text{ eV}$ mit einer Unsicherheit von ca. 2 eV behaftet. Dies kann auf mehrere Gründe zurückgeführt werden: Der Zusammenhang (3.11) ist offensichtlich von den Einschubbedingungen des Ionenstrahls in den Kondensator abhängig. Die Einschubbedingungen lassen sich experimentell nicht genau genug reproduzieren. Weitere nicht handhabbare Größen stellen Kontaktpotentiale im Analysator dar.

Das experimentelle Auflösungsvermögen des Kondensatorsystems beträgt:

$$R_{\text{Kond}} = \frac{E_{\text{Trans}}}{\delta E_{\text{FWHM}}} = (550 \pm 50) \quad (3.12)$$

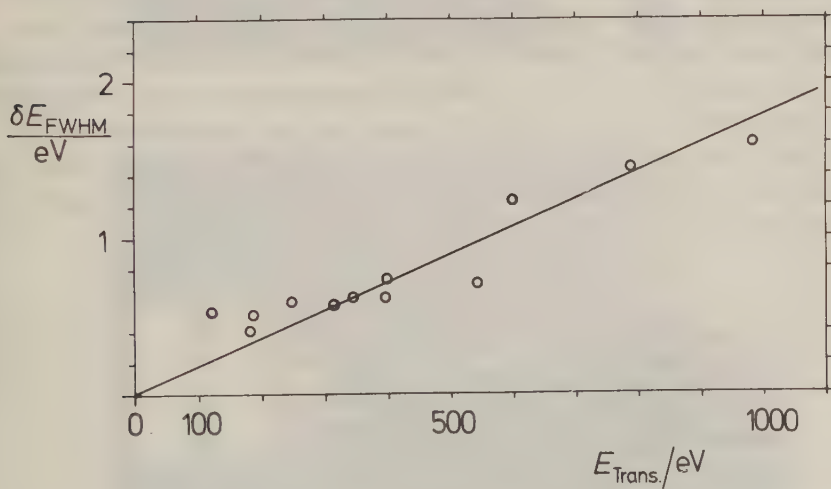


Fig. 3.15 Halbwertsbreite gemessener Ionenenergieverteilungen ($q = 2$) als Funktion der Kondensatortransmissionsenergie

In Fig. 3.15 ist die energetische Halbwertsbreite δE_{FWHM} gegen die Transmissionsenergie im Kondensatorsystem aufgetragen. Die gemessene

Halbwertsbreite setzt sich aus der apparativen Unschärfe, die durch die Transmissionsenergie im Kondensatorsystem festgelegt wird, und der Energieunschärfe des Ionenstrahls selbst (δE_S) zusammen.

$$\delta E_{FWHM} = (\delta E_S^2 + \delta E_{Kond}^2)^{1/2} \quad (3.13)$$

Wird der Analysator mit genügend kleinen Transmissionsenergien (E_{Trans}) betrieben, so ist die Halbwertsbreite der gemessenen Verteilung durch die Strahlunschärfe δE_S bestimmt. Bei hinreichend großer Transmissionsenergie hingegen bestimmt das apparative Auflösungsvermögen R_{Kond} die Breite der gemessenen Energieverteilung (experimentell ergibt sich ein etwa doppelt so großer Wert wie theoretisch vorausgesagt). Die energetische Primärstrahlbreite wird in Abschnitt 3.9 diskutiert.

3.6.2 Mechanischer Aufbau

Die Kondensatoren sind aus Edelstahl gefertigt, um einerseits saubere Oberflächen im Vakuum zu gewährleisten und andererseits mögliche permanente magnetische Momente ausschließen zu können. Ein- und Austrittsblende sind in die anschließenden Elektroden der Zoomlinsen integriert (Fig. 3.16). Keramikugeln ermöglichen einen potentialfreien Einbau der einzelnen Segmente und garantieren große Abstandsgenauigkeit. An würfelförmigen Elektroden ist das Zoomlinsensystem befestigt. Mit Grund- und Deckplatte wird der Aufbau zusammengehalten.



Fig. 3.16 Foto des Analysatoraufbaus; Deckplatte entfernt

Zur optischen Justierung des Translationsspektrometers sind in die Außenelektroden Löcher ($0.5\text{ mm } \varnothing$) - Richtung des ein- und auslaufenden Ionenstrahls - gebohrt. Der gesamte Strahlverlauf vom Massenspektrometer-Ausgangsspalt bis zum Justierloch des Translationsspektrometers ist mit Fernrohr und Laser optisch ausgerichtet worden.

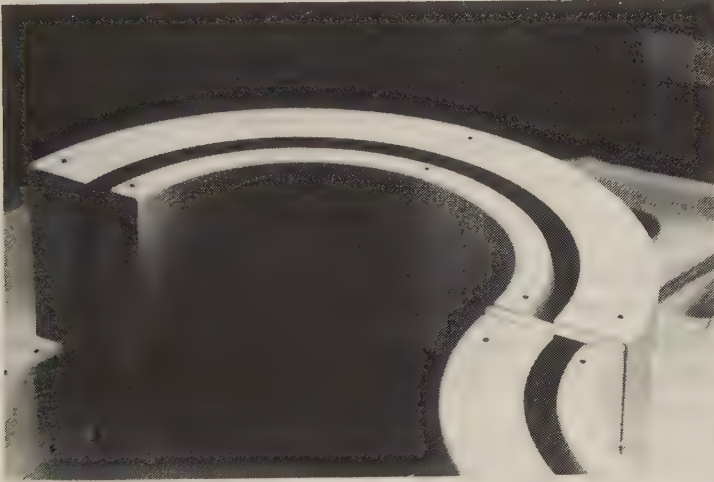


Fig. 3.17 Frontfoto des Kondensatorsystems

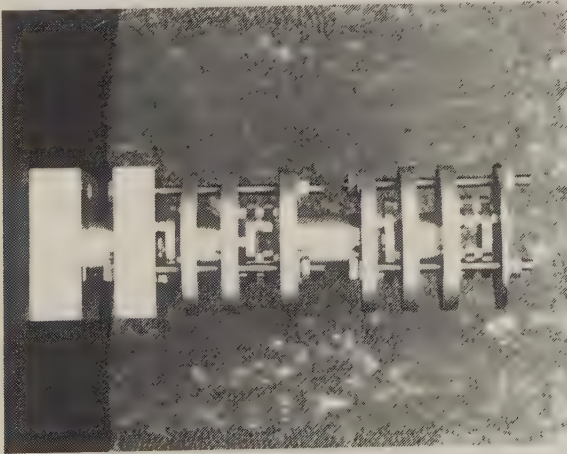


Fig. 3.18 Foto des Elektrodenaufbaus im Linsensystem
Keramikkugeln (Al_2O_3) garantieren gute Isolation und Abstandsgenauigkeit der einzelnen Elektroden untereinander

4. Durchführung der Messungen

4.1 Meßprinzip der Translationsspektroskopie

Die Aufnahme von Translationsspektren mit dem vorgestellten Spektrometer kann prinzipiell mit zwei verschiedenen Methoden erfolgen:

- a) Ionen verschiedener Energie können mit dem Channeltron nachgewiesen werden, indem die Kondensatorspannungen U_{EA} variiert werden.
- b) Bei konstanten Plattenspannungen U_{EA} werden Ionen vor dem Eintritt in den Kondensator elektrostatisch auf die festgelegte Sollbahnenergie verzögert oder beschleunigt und mit dem Channeltron nachgewiesen.

zu a)

Werden im Experiment Ionensignale als Funktion der Kondensatorspannung U_{EA} gemessen, so muß man berücksichtigen, daß sich das Auflösungsvermögen des Kondensatorsystems ändert. Das aufgezeichnete Spektrum ist zusätzlich mit der Apparatefunktion für die Halbwertsbreite gefaltet.

$$\delta E_{\text{Kond}} = \frac{E_{\text{Trans}}}{550} \quad (4.1)$$

$$(E_{\text{Trans}} = f(U_{EA}))$$

zu b)

Für die Aufnahme des Translationsspektrums eignet sich besser die zweite Methode. Mit festgelegter Transmissionsenergie ($U_{EA} = \text{const}$) werden Ionen vor Eintritt in den Kondensator im Zoomlinsensystem elektrostatisch verzögert oder beschleunigt, so daß sie mit dem Channeltron nachgewiesen werden können. Der Vorteil dieser Methode ist, daß Ionen verschiedener Energie vom Kondensatorsystem mit gleicher apparativ bedingter Unschärfe analysiert werden.

In Fig. 4.1 sind Kondensatoren und Zoomlinsen mit zugehöriger Verdrahtung schematisch dargestellt.

Eine in der Stoßzelle (SZ) vorliegende Ionenstrahlenergieverteilung soll ausgemessen werden.

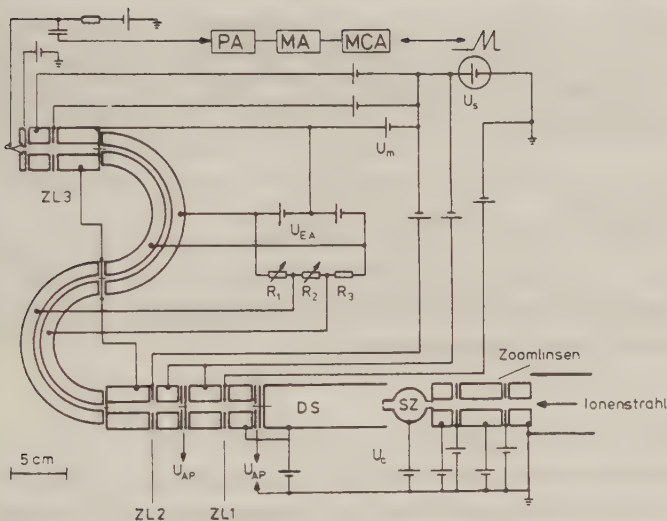


Fig. 4.1 Verdrahtung des Translationspektrometers
 PA: Vorverstärker, MA: Hauptverstärker, MCA: Vielkanalanalysator,
 SZ: Stoßzelle, DS: Driftstrecke, ZL: Zoomlinsen

Die Transmissionsenergie (typisch 100 eV bis 200 eV) legt die durch den Kondensator bedingte Meßunschärfe δE_{Kond} der Ionenenergie fest. Das gewählte Stoßzellenpotential U_c legt die Stoßenergie fest (typisch 100 bis 1000 eV bei zweifachgeladenen Ionen). Driftstrecke DS und Eingangselektrode der Zoomlinse ZL 1 werden mit einem von der Stoßzelle wenig verschiedenen Potential ($U_c \pm 10 \dots 20$ V) verbunden, um im Stoßzellenvolumen gebildete Ionen von Umladungsreaktionen auf dem gesamten Strahlweg zu trennen. Zoomlinse ZL 1 besorgt eine schwache Verzögerung ($E_3/E_1 = 0.9 \dots 1$) der zu untersuchenden Ionen.

Alle Potentiale der nachfolgenden Elektroden einschließlich der Ausgangselektrode von ZL 1 sind bezogen auf das variable Potential U_s (0...10 V) eines Sägezahngenerators. In der Zoomlinse ZL 2 er-

folgt die Verzögerung der Ionen auf die Transmissionsenergie des Kondensatorsystems. Die variable Sägezahnspannung U_S ist mit der Kanalfortschaltung eines Vielkanalanalysators (MCA) synchronisiert. Ionen A^{q+} , die sich in der kinetischen Energie um einen Betrag $(E_I - E_{II})$ unterscheiden, werden bei verschiedenen Sägezahnspannungen $U_S(I)$ und $U_S(II)$ registriert. Der Energieunterschied berechnet sich wie folgt:

$$\frac{E_I - E_{II}}{eV} = q \left(\frac{U_S(I) - U_S(II)}{V} \right) \quad (4.2)$$

Die Zoomlinsen ZL 2 und ZL 3 arbeiten bei der Spektrenaufnahme mit einem konstanten Verzögerungsverhältnis.

$$(E_3/E_1)_{ZL\ 1,2} = \text{const} \quad (4.3)$$

Der Quotient E_3/E_1 der Zoomlinse ZL 1 dagegen wird durch Variation der Sägezahnspannung U_S während der Spektrenaufnahme geändert.

Einerseits sorgt man im Experiment dafür, daß die Änderung des Quotienten klein ist ($\Delta U_S < 10\text{ V}$), um eine Korrektur des Mittelelektrodenpotentials vernachlässigen zu können, andererseits wird E_3/E_1 so gewählt, daß die Transmissionswahrscheinlichkeit der Zoomlinse für Ionen schwach unterschiedlicher Energie konstant ist. Typische experimentelle Daten sind:

$$(E_3/E_1)_{ZL\ 1} = 0.8 \dots 1.0$$

$$(E_3/E_1)_{ZL\ 2} \geq 0.15 \quad (4.4)$$

$$(E_3/E_1)_{ZL\ 3} \geq 2$$

Die Energieskala gemessener Translationsspektren wird mit Hilfe von Testreaktionen festgelegt. Testreaktionen zeichnen sich durch einen oder wenige, eindeutig identifizierbare Reaktionskanäle aus, so daß die Energieverteilungen der umgeladenen Ionen eindeutig ΔE -Werten zugeordnet werden können. Experimentell werden die Umladungsspektren in einem Gasgemisch aus Testgas und zu untersu-

chendem Reaktionsgas in der Stoßzelle gemessen. Die relative Lage der gemessenen Verteilungen zum Testmaximum legt die zugehörigen ΔE -Werte fest.

Um die Zuordnung mit guter Genauigkeit vornehmen zu können, müssen unterschiedliche Wirkungsquerschnitte für Testreaktion und Untersuchungsreaktion durch Einstellung verschiedener Partialdrücke von Test- und Reaktionsgas so kompensiert werden, daß gemessene Zählraten umgeladener Ionen in gleicher Größenordnung sind.

Zusätzlich zum relativen Beitrag einzelner Reaktionskanäle bei fester Stoßenergie wird die Stoßenergieabhängigkeit relativer differentieller Wirkungsquerschnitte der Umladungsreaktionen für $\vartheta = 0$ gemessen.

$$\sigma_{\text{rel}} = \frac{\sigma_{\vartheta=0}(E_1)}{\sigma_{\vartheta=0}(E_{1\text{max}})} \quad (4.5)$$

$E_{1(\text{max})}$ = (maximale) Laborenergie der Projektilen in der Stoßzelle

Durch Veränderung des Stoßzellenpotentials im Vergleich zum Potential am Ionenerzeugungsort werden verschiedene Stoßenergien eingestellt. Diese Methode gewährleistet, daß die Ionenstrahlzusammensetzung (metastabile Ionenzustände, Ionen im Grundzustand) unverändert bleibt. Der relative Wirkungsquerschnitt wird wie folgt bestimmt:

$$\sigma_{\text{rel}} = \frac{\ln(1+\eta(E_1))}{\ln(1+\eta(E_{1,\text{max}}))} \quad (4.6)$$

Folgende Abkürzung wird verwendet:

$$\eta = \frac{\int \dot{N}(A^{(q-1)+}) dE_{\text{kin}}}{\int \dot{N}(A^{q+}) dE_{\text{kin}}} \quad (4.7)$$

Die Integration erfolgt über die kinetische Energie der primären und sekundären Ionen. Der Wert $\eta(E_{1,\text{max}})$ wird aus der Messung bei maximal eingestellter Stoßenergie E_1 bestimmt.

Im Experiment werden bei einem Stoßzellendruck p_{SZ} des Targetga-

ses die Zählraten nicht umgeladener Projektionen ($\dot{N}(A^{q+})$) und umgeladener Ionen ($\dot{N}(A^{(q-1)+})$) gemessen. Da Energieverteilungen vorliegen, müssen die Zählraten über die Energie integriert werden.

4.2 Fehlerdiskussion

4.2.1 Meßungenauigkeit bei der Aufnahme der Energiespektren

Die Interpretation gemessener Energiespektren erfordert eine große Genauigkeit in der Festlegung der Energieskala. Die Unsicherheit in der Bestimmung der Energiedefekte ΔE und somit in der Festlegung der Energieskala ist im wesentlichen durch drei Einflüsse bestimmt:

- a) Meßungenauigkeit der elektrischen Spannungen
- b) Projektilzustandsfestlegung
- c) Stoßdynamische Effekte

zu a) Die Zuordnung von Sägezahnspannung und Kanalnummer des Vielkanalanalysators ist mit einer Unsicherheit von ± 0.005 V behaftet. D.h. im Falle einfachgeladener Ionen beträgt die Unsicherheit ± 0.005 eV.

zu b) Da die experimentelle Auflösung auf 0.25 eV beschränkt ist, kann die Spektrenlage durch Projektilzustände, die energetisch vom Grundzustand nur wenig verschieden sind, verändert werden. Zweifachgeladene Edelgasionen liegen im Grundzustand in einem 3P_J -System mit $J = 1, 2, 3$ vor. Diese Zustände sind metastabil und unterscheiden sich im Falle Ne und Ar vom Grundzustand um ca. 0.1 eV bzw. ca. 0.2 eV. Besteht der Primärionenstrahl in der Stoßzelle aus Grundzustandsionen in verschiedenen Drehimpulszuständen (statisches Gewicht für die Besetzung $g_J = 2J + 1$), so kann die Energieskala nur auf etwa ± 0.1 eV genau festgelegt werden.

zu c) Aus stoßdynamischen Gründen ist der im Experiment gemessene Q-Wert nur unter bestimmten Voraussetzungen mit dem Energiedefekt ΔE identisch (siehe Abschnitt 2.3). In den untersuchten Systemen ist gewährleistet, daß der Energiedefekt ΔE klein gegen die Stoßenergie ist. Durch das Winkelauflösungsvermögen von 0.7° sind die erfaßbaren Reaktionswinkel so klein gewählt, daß Abweichungen des Q-Wertes vom ΔE -Wert maximal in der Größenordnung von 0.02 eV liegen. Folgende Gesamtungenauigkeit ergibt sich für die Festlegung der Energieskala:

$$\delta(\Delta E) \approx \pm 0.13 \text{ eV}$$

(4.8)

4.2.2 Fehler in der Bestimmung relativer Wirkungsquerschnitte

Um den relativen Wirkungsquerschnitt zu bestimmen, ist es nötig, die Energiespektren der umgeladenen Ionen sowie die Primärionen zu messen. Eine gute Statistik wurde gewährleistet durch geeignet große Meßzeiten pro Kanal des Vielkanalanalysators (Meßzeit pro Kanal bei Durchlauf: 0.1 s, Gesamtzahl Kanäle: 256, maximal 60 Durchläufe). In der gesamten Meßzeit der Spektren umgeladener Ionen können Primärstrahlschwankungen auftreten, die zu einer Unsicherheit von etwa 5 % für die Bestimmung der relativen Wirkungsquerschnitte führen.

Ein methodischer Fehler bei der Messung der umgeladenen und primären Ionen kann in unterschiedlicher Nachweiswahrscheinlichkeit liegen. Unter Berücksichtigung der Transmissionskurven der Zoomlinsen des Spektrometers sollte der verursachte Fehler bei etwa 10 % liegen. Unterschiedliche Sekundärelektronenauslösewahrscheinlichkeiten verschiedener Ladungszustände im Channeltron sind vernachlässigbar, da dafür gesorgt ist, daß alle Ionen beim Auftreten auf die Channeltronkathode gleiche Energie ($\approx 1.5 \text{ keV}$) haben.

Der Targetgasdruck wird mit einer Ionisationsmeßröhre bestimmt. Da relative Druckänderungen gemessen werden, liegt die Unsicherheit bei der Druckmessung unterhalb 1 %. Es ergibt sich ein Gesamtfehler von etwa 12 % für die Bestimmung der relativen Wirkungsquerschnitte $\sigma_{\text{rel}, \vartheta=0^\circ}$.

5. Diskussion der Testmessungen

5.1 Primärstrahleigenschaften

Mit der beschriebenen Nachweiseinheit konnte die Energiebreite (Halbwertsbreite) des primären Ionenstrahls experimentell untersucht werden. In der hochauflösenden Translationsspektroskopie ist die Energieunschärfe des Primärstrahls von großer Bedeutung, da sie zusammen mit dem apparativen Auflösungsvermögen des Spektrometers gerade noch auflösbare Strukturen im Energiespektrum bestimmt.

Zweifach- und dreifachgeladene Ionen wurden untersucht. Die energetische Strahlbreite wird über Gleichung (3.13), Abschnitt 3.6.1 bestimmt. Zur Messung wird die apparativ bedingte Unschärfe des Spektrometers durch eine Strahlenergie im Kondensator von ca. 100 eV auf etwa 0.2 eV eingestellt. In Tabelle 5.1 sind die gemessenen Werte verschiedener Ionensorten aufgeschrieben.

Ionensorte	$\delta E_S / \text{eV}$
Ne^{2+}	0.20
Ar^{2+}	0.40
Xe^{2+}	0.55
Ar^{3+}	0.62

Tabelle 5.1 Minimale experimentell erreichbare energetische Halbwertsbreite erzeugter Ionenstrahlen

Ursache für die unterschiedlichen Halbwertsbreiten verschiedener Ionen ist der Ionenquellenbetrieb. Der Betrieb muß so eingestellt sein, daß möglichst ein intensiver Ionenstrahl scharfer Energie erzeugt wird. Die gemessenen Strahlbreiten sind bei einer Elektronenenergie in der Ionenquelle von 300 eV gefunden worden. Die Zählraten zweifachgeladener Ionen betrugen typisch $N \approx 1000 \text{ s}^{-1}$. Optimierte Quellenbetriebsdaten für zweifachgeladene Ionen sind:

$$U_A = + 300 \text{ V}, U_{EL,e} = + 40 \text{ V}, U_{Rep} = + 296 \text{ V},$$

$$E_{el} = 300 \text{ eV}, U_{Ex} = + 260 \dots 280 \text{ V}$$

(alle Spannungen bez. Erdpotential siehe Fig. 3.2 in Abschnitt 3.1)

In Fig. 5.1 ist ein typisches Primärstrahlprofil von Ar^{2+} -Ionen zu sehen.

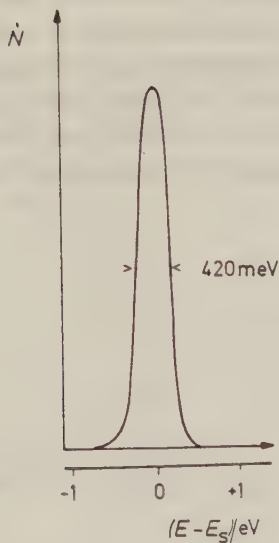


Fig. 5.1 Primärstrahlprofil (Ar^{2+} -Ionen). Transmissionsenergie $E_{\text{Trans}} = 130 \text{ eV}$

Gemessene Translationsspektren können aus zueinander versetzten Maxima, die zu verschiedenen Reaktionskanälen gehören, bestehen. Die Entfaltung (Zerlegung in sich überlappende Maxima) dieser Spektren muß mit dem dazugehörigen Primärstrahlprofil geschehen. Da die Profile durch den Ionenquellenbetrieb beeinflusst werden können, muß der Primärstrahl vor jeder Untersuchung ausgemessen werden.

5.2 Umladung von Ar^{2+} -Ionen in Ne und He

Um Wirkungsweise und Funktion des Translationsspektrometers in Verbindung mit der Stoßapparatur zu testen, werden in der Literatur bereits bekannte Umladungsreaktionen untersucht.

Die Umladung von zweifachgeladenen Argonionen in einem Neon-Target bei Stoßenergien unterhalb 2 keV (Laborenergie) wurde von Huber¹¹ und Kamber¹² untersucht. Beide Autoren fanden, daß im dominanten Reaktionskanal mit einem Energiedefekt von 6 eV Ar^+ und Ne^+ Ionen

im Grundzustand gebildet werden. Huber¹¹ findet zunächst eine Energieverteilung umgeladener Ar^+ -Ionen mit Energiedefekten um - 12 eV. Wegen der schlechten Energieauflösung ($\delta E \approx 8$ eV) gelingt nur eine grobe qualitative Analyse. Kamber und Mitarbeiter haben eine Energieauflösung von etwa 0.9 eV im Experiment erzielt, so daß sie zeigen konnten, daß metastabile Ar^{2+} Projektilionen im $^1\text{D}_2$ -Zustand neben Grundzustandsionen im Primärionenstrahl vorliegen. In Fig. 5.2 ist ein mit der vorgestellten Apparatur gemessenen Translationsspektrum dargestellt.

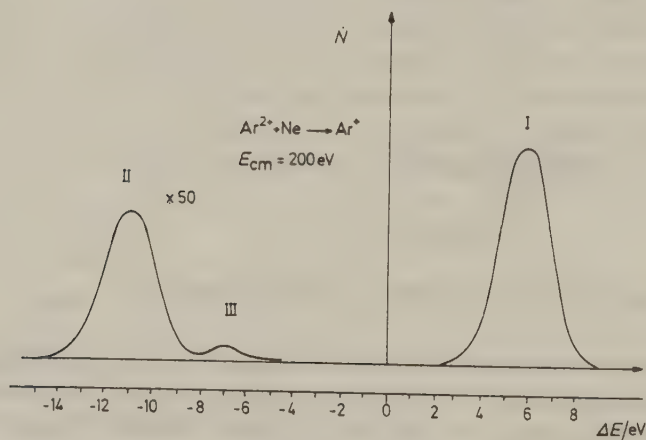


Fig. 5.2 $\text{Ar}^{2+} + \text{Ne} \rightarrow \text{Ar}^+$
Translationsspektrum der umgeladenen Ar^+ -Ionen

Der Bereich um $\Delta E = + 6$ eV ist mit höherer Energieauflösung untersucht worden (Fig. 5.3). Endotherme Reaktionskanäle konnten aus Intensitätsgründen nicht besser aufgelöst werden.

Das Translationsspektrum (Fig. 5.3) zeigt deutlich, daß der Primärionenstrahl sich aus Ar^{2+} -Ionen im Grundzustand ^3P und im metastabilen Zustand $^1\text{D}_2$ zusammensetzt. Die Umladungsquerschnitte sind für verschiedene Projektilionenzustände nicht bekannt, daher kann auf den relativen Anteil metastabiler Primärionen nicht geschlossen werden. Das gemessene Spektrum ist in sehr guter Übereinstimmung mit Daten von Kamber und Mitarbeitern¹².

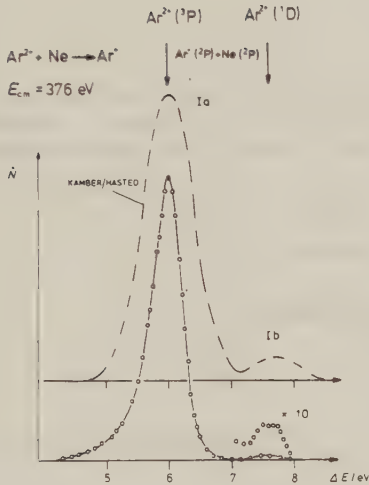


Fig. 5.3 $\text{Ar}^{2+} + \text{Ne} \rightarrow \text{Ar}^+$ Translationsspektrum
gestrichelte Kurve: Messung von Kamber et al. 12

Die asymmetrische Gestalt des Hauptmaximums kann durch die Bildung von Ar^+ -Ionen und Ne^+ -Ionen bevorzugt im $^2\text{P}_{1/2}$ -Zustand mit etwas kleinerem Energiedefekt im Vergleich zum $^2\text{P}_{3/2}$ Zustand erklärt werden. Endotherme Reaktionskanäle (Fig. 5.1) können nicht eindeutig zugeordnet werden, ob metastabile Projektilzustände von Bedeutung sind, kann ebenso nicht entschieden werden. Im Vergleich zu den Messungen von Huber¹¹ ist jedoch die Bedeutung von Energiedefekten um - 7 eV zu sehen, was auch Kamber und Mitarbeiter gefunden haben. Dieser Energiedefektbereich ist korreliert mit der Bildung von Ar^+ im $^2\text{S}_{1/2}$ -Zustand mit Ne^+ im Grundzustand. Beim Ablauf dieser Reaktion wird nicht einfach ein Elektron vom Ar^{2+} -Ion eingefangen, sondern zusätzlich die Elektronenhülle ('core') des Ar^{2+} -Ions umgeordnet. Das Ar^+ -Ion liegt im angeregten $^2\text{S}_{1/2}$ -Zustand vor. Im Unterschied zur vorher beschriebenen Reaktion bleibt die Elektronenhülle ('core') des Ar^{2+} -Ions nicht erhalten. In Tabelle 5.2 sind die

tifizierte Reaktionskanäle bzw. Reaktionskanalbereiche angegeben.

Projektil	Target	Reaktionsprodukte	$\Delta E/\text{eV}$	Max.Nr.
$\text{Ar}^{2+}({}^3\text{P}) + \text{Ne}({}^1\text{S}_0)$	-	$\text{Ar}^+({}^2\text{P}) + \text{Ne}^+({}^2\text{P})$	+ 6.1	I a
			:	
			+ 5.8	III
		$\text{Ar}^{*+}({}^2\text{S}_{1/2}) + \text{Ne}^+({}^2\text{P})$	- 7.4	
			- 7.5	
		$\text{Ar}^{*+}(({}^3\text{P})3\text{d}^4\text{D}) + \text{Ne}^+({}^2\text{P})$	- 10.3	
		4s ⁴ P	- 10.6	II
		4s ² P	- 11.1	
		:	:	
		:	:	
$\text{Ar}^{2+}({}^1\text{D}_2) + \text{Ne}({}^1\text{S}_0)$	-	$\text{Ar}^+({}^2\text{P}) + \text{Ne}^+({}^2\text{P})$	+ 7.8	I b
			:	
			+ 7.5	

Tabelle 5.2 Relevante Reaktionskanäle für die Umladung von Ar^{2+} -Ionen in Neon

Ähnlich wie im beschriebenen System Ar^{2+}/Ne liegen die Verhältnisse bei der Umladung von Ar^{2+} -Ionen in Helium. Der Grundzustandsreaktionskanal mit $\Delta E = + 3.04 \text{ eV}$ sollte dominant sein, da die Bildung von angeregten Ar^{*+} - oder He^{*+} -Ionen mit negativen Energiedefekten ($< - 10 \text{ eV}$) abläuft.

In Fig. 5.4 ist das gemessene Ar^+ -Ionen-Translationsspektrum zu sehen. Es werden zwei Maxima beobachtet. Das Hauptmaximum Ib muß einem Energiedefekt von $+ 4.6 \text{ eV}$ zugeordnet werden. Zur Festlegung der Energieskala wurde die Umladung von Ar^{2+} -Ionen in einem (HeNe) -

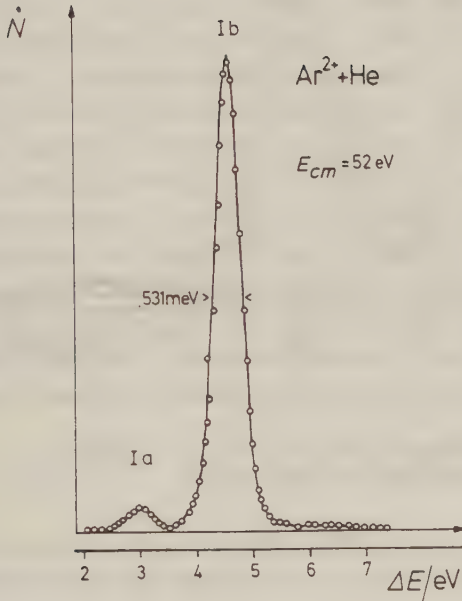


Fig. 5.4 $Ar^{2+} + He \rightarrow Ar^+$ Translationsspektrum

Gasgemisch durchgeführt.

Fig. 5.5 zeigt das gemessene Translationsspektrum. Maxima bei + 6 eV und + 7.5 eV entsprechen den exothermen Reaktionskanälen der Umladungsreaktion von Ar^{2+} in Ne, Maxima Ia und Ib entstehen durch Umladung im He-Target. Das Translationsspektrum 5.4 kann nur verstanden werden, wenn folgende Zuordnung getroffen wird (Tabelle 5.3):

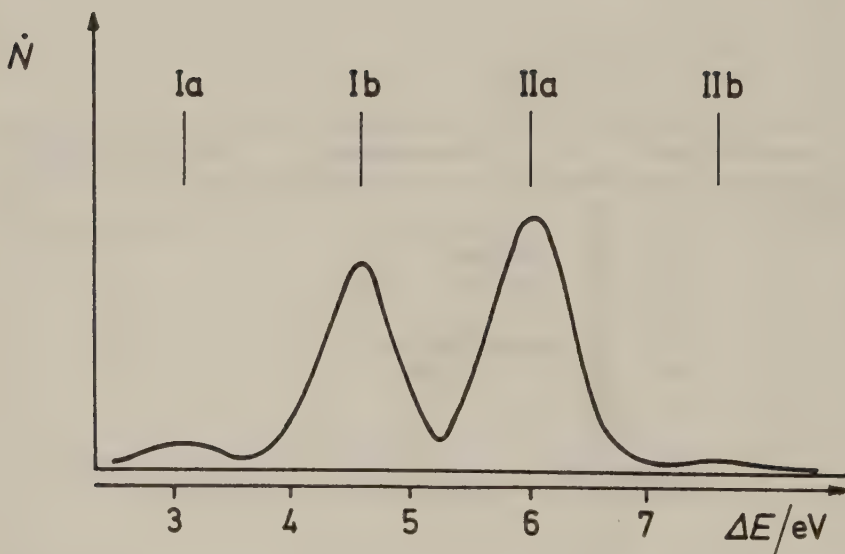


Fig. 5.5 Translationsspektrum von Ar^+ -Ionen, die durch Umladung von Ar^{2+} in einem HeNe-Gasgemisch gebildet werden.

In Tabelle 5.3 sind jeweils zwei Energiedefekte pro Reaktionskanal angegeben, die der Bildung von Ar^+ in $^2\text{P}_{3/2}$ - und $^2\text{P}_{1/2}$ -Zustand entsprechen.

Projektil	Target	Reaktionskanal	$\Delta E/\text{eV}$	Max.Nr.
$\text{Ar}^{2+}(^3\text{P}) + \text{He}(^1\text{S}_0)$	$\longrightarrow$	$\text{Ar}^+(^2\text{P}) + \text{He}^+(n=1)$	$+ 3.04$ $+ 2.87$	I a
$\text{Ar}^{2+}(^1\text{D}) + \text{He}(^1\text{S}_0)$	$\longrightarrow$	$\text{Ar}^+(^2\text{P}) + \text{He}^+(n=1)$	$+ 4.77$ $+ 4.60$	I b

Tabelle 5.3 Identifikation der Reaktionskanäle im System $\text{Ar}^{2+} + \text{He}$

In Fig. 5.5 und 5.4 wird deutlich, daß der Hauptanteil gebildeter Ar^+ -Ionen in Ar^{2+}/He Stößen seinen Ursprung in der Umladung von metastabilen $\text{Ar}^{2+}({}^1\text{D}_2)$ -Ionen hat. Über den Anteil metastabiler Ionen im Primärstrahl kann keine Aussage gemacht werden, da auch hier die Umladungsquerschnitte nicht bekannt sind. Anhand des Spektrums in Fig. 5.5 wird deutlich, daß der Energiedefekt eine entscheidende Rolle für den Ablauf einer Umladungsreaktion spielt. Es gibt im Falle zweifachgeladener Ionen einen relativ scharfen Wechselwirkungsbereich zwischen $5 a_0$ und $10 a_0$ (siehe Huber⁴⁸), wo diabatische Potentialkurven der Molekülzustände einen Kreuzungspunkt haben müssen, damit die Umladungsreaktion mit großem Wirkungsquerschnitt abläuft. Außerhalb dieses Bereiches nimmt die Übergangswahrscheinlichkeit schnell ab, so daß die Wirkungsquerschnitte kleine Werte annehmen. Besteht der Primärstrahl eines untersuchten Umladungssystems aus Ionen in verschiedenen elektronischen Zuständen, so sorgt die Anregungsenergie der Projektile für eine Verschiebung der zugehörigen Potentialkurven. Es ist daher möglich, daß je nach Lage des Kreuzungspunktes metastabile Ionen oder Grundzustandsionen das Umladungsspektrum bestimmen.

5.3 Umladung von He^{2+} -Ionen in Xe

Die Umladung von He^{2+} -Ionen in Xenon ist als weitere Testreaktion untersucht worden. Im Unterschied zu den beschriebenen Testreaktionen gibt es nur einen stabilen Projektilzustand. Afrosimov⁴⁹ fand zwei Reaktionskanäle, die mit der Bildung von He^+ im $n = 2$ - Zustand einhergehen.

In Fig. 5.6 ist das mit der beschriebenen Apparatur gemessene Umladungsspektrum zu sehen. Der dominante Reaktionskanal liegt bei einem Energiedefekt von $+ 1.5 \text{ eV}$. Das Xe^+ -Ion liegt in Zustand ${}^2\text{P}_{3/2}$ vor.

Im zweiten Kanal wird Xe^+ im $^2\text{P}_{1/2}$ -Zustand gebildet. Der Abstand beider Maxima entspricht der Feinstrukturaufspaltung des Xe^+ ^2p -Zustands von 1.32 eV; das gemessene Translationsspektrum ist in exzellenter Übereinstimmung mit Daten von Afrosimov⁴⁹.

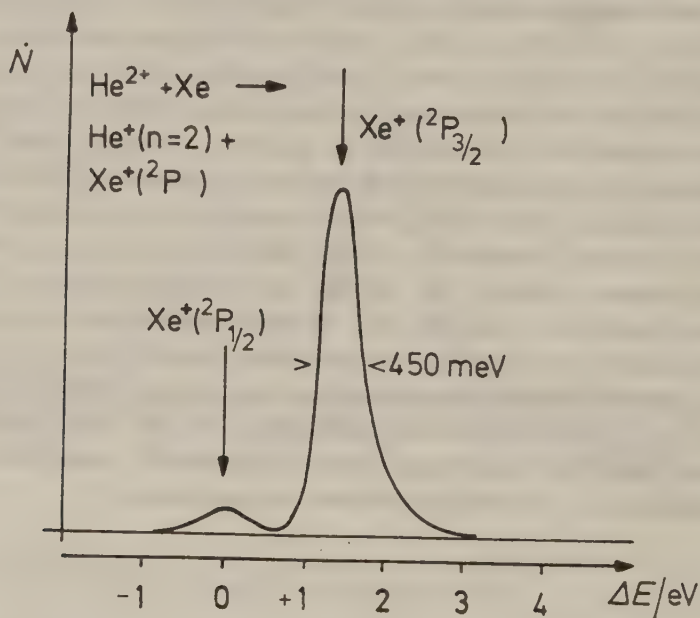


Fig. 5.6 Umladungsreaktion: $\text{He}^{2+} + \text{Xe} \rightarrow \text{He}^{+*} + \text{Xe}^+$. Translationsspektrum der gebildeten He^+ -Ionen

6. Ergebnisse

6.1 Umladung von Ne^{2+} -Ionen in Xenon

Das Stoßsystem Ne^{2+}/Xe hat folgende Merkmale bez. Elektroneneinfangreaktionen: Neben reinem Elektroneneinfang ist der Prozeß der Transferionisation mit exothermer Wärmetönung möglich. In Fig. 6.1 ist das Potentialkurvenschema zu sehen. Dargestellt sind die Potentialkurven in einer Näherung für Kernabstände größer als $3 a_0$, d.h. es wurde nur die Coulomb- und Polarisationswechselwirkung der Teilchen berücksichtigt.

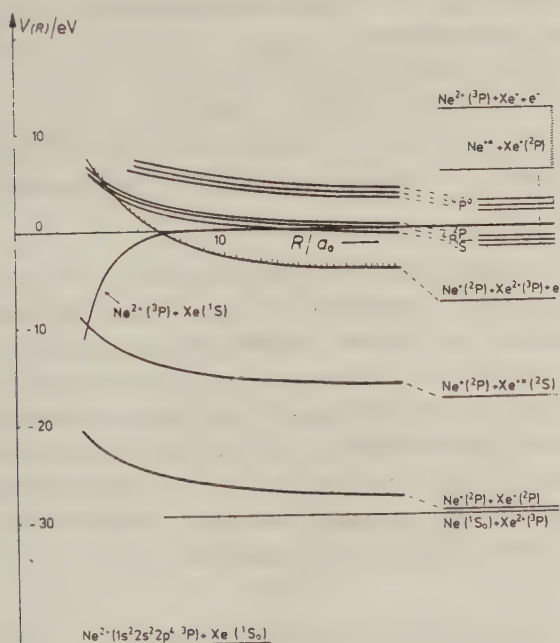


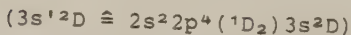
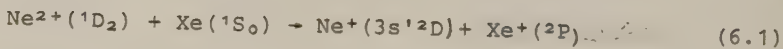
Fig. 6.1 Potentialkurvenschema des Stoßsystems Ne^{2+}/Xe

Der Nullpunkt der Energieskala wird durch die Potentialkurve des einlaufenden Systems für R gegen unendlich festgelegt. Beide Teilchen sollen vor dem Stoß im Grundzustand vorliegen. Nur bei klei-

nen Kernabständen sorgt die Polarisationswechselwirkung für eine Anziehung beider Stoßpartner.

Die Grundzustandsreaktion ($\text{Ne}^{2+}({}^3\text{P}) + \text{Xe}({}^1\text{S}) \rightarrow \text{Ne}^+({}^2\text{P}) + \text{Xe}^+({}^2\text{P})$, $\Delta E = + 28.9 \text{ eV}$) sowie der Transfer eines inneren 5 s-Elektrons vom Xe-Atom zum Ne^{2+} -Ion ($\Delta E = +11.3 \text{ eV}$) sind stark exotherm. Die Energiedefekte werden mit Hilfe der bekannten atomaren Energieniveaus (Moore⁵⁰) berechnet. In den exothermen Bereich $+ 1 \text{ eV} \leq \Delta E \leq + 2 \text{ eV}$ fallen im Ausgangskanal Systeme mit Ne^{+*} -Ionen in angeregten Zuständen (${}^2\text{P}$, ${}^4\text{P}$, ${}^2\text{S}$); zusätzlich ist die Grenzkurve für den Prozeß der Transferionisation eingezeichnet. Diese Reaktion, die je nach kinetischer Energie des emittierten Elektrons zu Energiedefekten kleiner als $+ 7.7 \text{ eV}$ führen muß, sollte wie Rille und Winter¹⁵ aus experimentellen Daten schließen, die durch optische Messungen gewonnen wurden, keine Bedeutung haben, da die Autoionisation nur bei Kernabständen größer als $7 a_0$ auftreten kann. Bei diesen Abständen sollte die Kopplung der Stoßpartner bez. Autoionisation gering sein, so daß dieser Prozeß unwahrscheinlich ist.

Identifiziert man die einlaufende Kurve des Systems im Falle metastabiler Projektilen $\text{Ne}^{2+}({}^1\text{D}_2)$ wieder für R gegen unendlich mit dem Nullpunkt der Energieskala, so liegen alle Potentialkurven der umgeladenen Systeme etwa 3.2 eV tiefer als im vorher beschriebenen Potentialkurvenbild. Die zugehörigen Potentialkurvenkreuzungen treten bei kleineren Kernabständen auf. Im positiven Energie-defektbereich gibt es nur zwei Reaktionskanäle für die Umladung metastabiler Ne^{2+} -Ionen im ${}^1\text{D}_2$ -Zustand; die ohne Änderung der ${}^1\text{D}_2$ -Konfiguration des Ne^{2+} -Ionenrumpfes ablaufen.



Energiedefekte : $\Delta E = + 1.61 \text{ eV} \pm 0.29 \text{ eV}$

Die Erhaltung des Ionenrumpfes z.B. ist nach Meinung von Rille und Winter¹⁵ ein wichtiges Kriterium neben der Lage der Potentialkurvenkreuzung, ob einzelne Reaktionskanäle zum Umladungsprozeß beitragen. Da der Elektronentransfer bei relativ großen Kernab-

ständen stattfindet, sollte eine Anregung der inneren, gebundenen Elektronen des Projektils unwahrscheinlich sein.

Die Transferionisation sollte im Falle von metastabilen Ne^{2+} -Ionen im ^1D -Zustand wahrscheinlicher sein, da mögliche Kontinuumszustände bei Kernabständen größer als $5 a_0$ zu Potentialkurvenkreuzungen führen. Im Vergleich zum Stoßsystem, das aus Ne^{2+} -Ionen im Grundzustand besteht, erwarten Rille und Winter¹⁵ wegen einer stärkeren Kopplung bei kleineren Kernabständen höhere Beiträge umgeladener Projektionen durch den direkten Prozeß der Transferionisation (siehe Abschnitt 3, Prozeß I) über metastabile Projektionen.

6.2.2 Meßergebnisse und Diskussion

Ein typisches Translationsspektrum der gebildeten schnellen Ne^+ -Ionen bei einer Stoßenergie im Schwerpunktsystem von $E_{\text{cm}} = 465 \text{ eV}$ ist in Fig. 6.2 für $\vartheta = 0^\circ$ zu sehen.

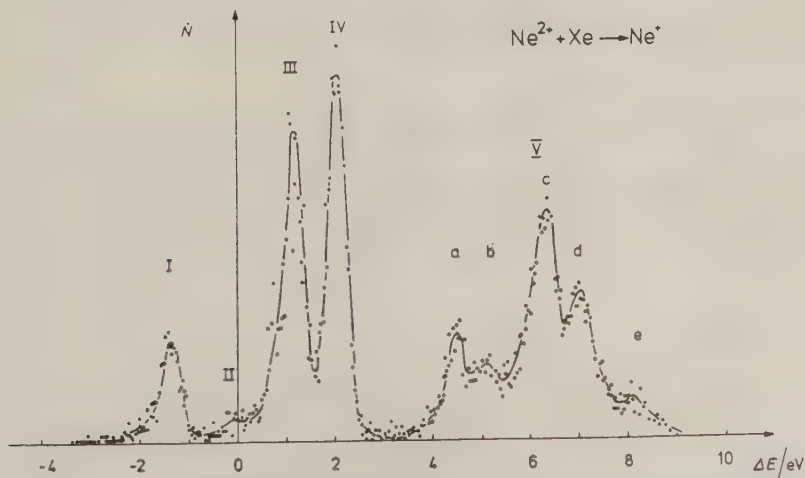


Fig. 6.2 Typisches Translationsspektrum der schnellen Ne^+ -Ionen, die durch Umladung von Ne^{2+} -Ionen im Xenon entstehen ($E_{\text{cm}} = 465 \text{ eV}$, $\vartheta = 0^\circ$). Der Zoomlinsenbetrieb (siehe Abschnitt 3.5) ist so gewählt, daß Maxima Va bis Ve vergrößert dargestellt werden.

Die Energieskala ist durch Vergleich mit anderen Umladungsmessungen (Ne^{2+}/Ar , Ne^{2+}/Kr , Abschnitt 6.2) in eine kalibrierte ΔE -Skala transformiert. Die Analyse des Spektrums zeigt, daß eine grobe Einteilung in zwei Bereiche vorgenommen werden kann. Strukturen mit ΔE -Werten kleiner als + 3 eV (Maximum Nr. I bis IV) entstehen durch reine Elektroneneinfangreaktionen, dagegen repräsentieren Maxima bei positiveren Energiedefekten (Va bis Ve) den Prozeß der Transferionisation.

In dem untersuchten Stoßenergiebereich werden dominant die angeregten Zustände $3s^2P$ und $2s2p^6\ ^2S_{1/2}$ des Ne^{+*} bevölkert. Die zugehörigen Energiedefekte liegen bei +1.1 eV und + 2.0 eV, wenn das Xe^{+} -Ion im Grundzustand $^2P_{3/2}$ gebildet wird (Maxima: III, IV). Weiterhin wird Ne^{+*} im $3p^4P_0$ -Zustand in einer schwach endothermen Reaktion gebildet ($\Delta E = -1.6$ eV, Maximum I).

Feinere Details können Fig. 6.3 entnommen werden, in der ein Teil des Spektrums, das mit höherer Energieauflösung gemessen wurde, abgebildet ist.

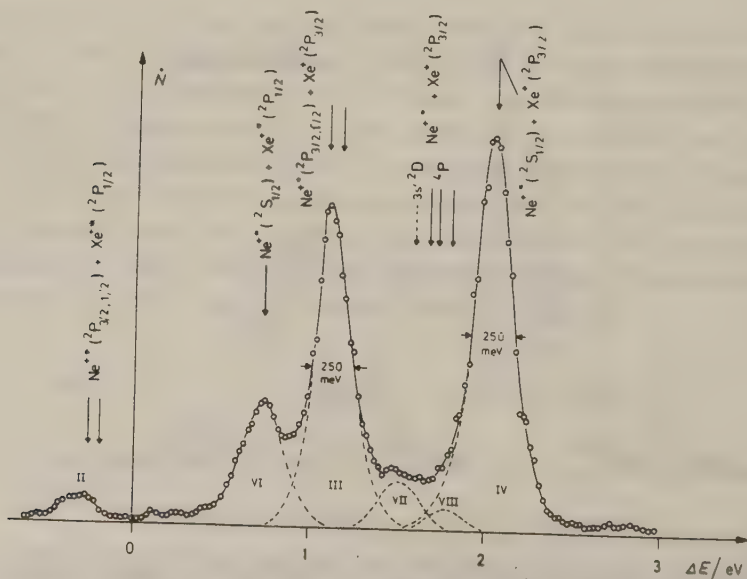


Fig. 6.3 Ausschnitt des Translationsspektrums, das in Fig. 6.2 dargestellt ist und mit größerer Energieauflösung gemessen wurde ($E_{\text{cm}} = 489$ eV)

Die Energieauflösung von 250 meV ist durch die Energiehalbwertsbreite des erzeugten Ne^{2+} -Ionenstrahls begrenzt. Eine Entfaltung des dargestellten Spektrums zeigt, daß der Einfang in dem 2S - und 2P -Zustand des Ne -Ions mit und ohne simultane Targetanregung stattfindet. Das gebildete Xe^{+} -Ion kann im $2\text{P}_{3/2}$ Grundzustand (Maximum III und IV) oder im $2\text{P}_{1/2}$ Anregungszustand (Maxima II, VI) vorliegen. Der energetische Abstand zugehöriger Maxima ($\text{IV} \leftrightarrow \text{VI}$, $\text{III} \leftrightarrow \text{II}$) entspricht der Spin-Bahn-Aufspaltung des 2P -Zustands des Xe^{+} -Ions.

Im hochaufgelösten Spektrum (Fig. 6.3) werden weitere Beiträge bei anderen Energiedefekten beobachtet. Maximum VII entsteht durch Umladung metastabiler Ne^{2+} -Ionen im 1D_2 -Zustand zum angeregten Ne^{+*} ($2\text{s}^2 2\text{p}^4 (1\text{D}_2) 3\text{s}^2 \text{D}$). Der Einfluß einer möglichen Kontamination des Primärstrahls mit Ionen im metastabilen 1D_2 -Zustand auf das gemessene Spektrum ist gering. Ein sehr kleiner Anteil umgeladener Ionen liegt im 4P -Zustand des Ne^{+*} vor (Maximum VIII). Das ist überraschend, zumal optische Messungen von Rille und Winter¹⁵ bei Stoßenergien von 15 keV zeigen, daß gerade dieser Zustand mit dem größten Wirkungsquerschnitt bevölkert wird. Jedoch zeigen die Daten der genannten Autoren, daß der Wirkungsquerschnitt für diesen Kanal mit der Energie stark abnimmt, während auf der anderen Seite die Formation des 2S -Zustands bei kleinen Stoßenergien immer wahrscheinlicher wird.

Identifizierte Reaktionskanäle für den Elektroneneinfang sind in Tabelle 6.1 zusammengestellt.

Der Vergleich gemessener und mit Daten bekannter atomarer Energieniveaus⁵⁰ berechneter Energiedefekte zeigt eine gute Übereinstimmung. Der relative Anteil einzelner Kanäle ist in der letzten Spalte von Tabelle 6.1 angegeben.

Es ist zunächst überraschend, daß der 2S -Zustand des Ne^{+*} -Ions in einem dominanten Reaktionskanal gebildet wird, da in dieser Reaktion eine Umbildung des Ne^{2+} Primärionenrumpfes stattfindet. Berücksichtigt man, daß mit kleinerem Energiedefekt die Potentialkurvenkreuzungen bei größeren Kernabständen auftreten, wo die Kopplung schwächer ist, so hat der genannte Reaktionskanal die günstigste Kurvenkreuzung. Weiterhin kann man sagen, daß im Falle der untersuchten langsamen Stöße (siehe Abschnitt 1.1) dem System während des Stoßes genügend Zeit bleibt, Molekülzustände zu formen,

Max.Nr.	Reaktionskanal	$\Delta E_{\text{exp}}/\text{eV}$	$\Delta E_{\text{theor.}}/\text{eV}$	rel. Anteil ($E_{\text{cm}} = 465 \text{ eV}$)
	$\text{Ne}^{2+}(^3\text{P}) + \text{Xe}(^1\text{S}_0) \rightarrow$			
I	$\text{Ne}^{++}(3\text{p}^0) + \text{Xe}^+(^2\text{P}_{3/2})$	- 1.40	- 1.56/-1.62	0.14
II	$\text{Ne}^{++}(3\text{s}^2\text{P}) + \text{Xe}^{++}(^2\text{P}_{1/2})$	- 0.15	- 0.15/- 0.22	0.02
III	$\text{Ne}^{++}(3\text{s}^2\text{P}) + \text{Xe}^+(^2\text{P}_{3/2})$	1.10	1.09/1.16	0.27
IV	$\text{Ne}^{++}(2\text{s}2\text{p}^6\text{S}) + \text{Xe}^+(^2\text{P}_{3/2})$	2.04	2.04	0.36
VI	$\text{Ne}^{++}(2\text{s}2\text{p}^6\text{S}) + \text{Xe}^{++}(^2\text{P}_{1/2})$	0.76	0.73	0.13
VIII	$\text{Ne}^{++}(3\text{s}^2\text{P}) + \text{Xe}^+(^2\text{P}_{3/2})$	1.80	1.68/1.79	0.06
	$\text{Ne}^{2+}(^1\text{D}) + \text{Xe}(^1\text{S}_0)$			
VII	$\text{Ne}^{++}(3\text{s}^1\text{D}) + \text{Xe}^+(^2\text{P}_{3/2})$	1.57	1.61	0.02

Tabelle 6.1 Identifizierte Reaktionskanäle für den Elektroneneinfang im Stoßsystem Ne^{2+}/Xe

in denen mehrere Elektronen umgeordnet werden. Im Falle hochenergetischer Stöße dagegen ist zu erwarten, daß die Wechselwirkungszeit zu klein ist, um Reaktionskanäle mit Änderung des Rumpfzustandes des Primärions zu beobachten.

Der Zustand $^4\text{P}^0$ des Ne^{++} -Ions wird mit einem Energiedefekt von ca. - 1.6 eV gebildet. Die dargestellten angenäherten Potentialkurven besitzen keinen Kreuzungspunkt. Nur bei Kernabständen, die kleiner als der dargestellte Bereich (Fig. 6.1) sind, können sogenannte innere Kreuzungen auftreten, da alle Potentialkurven bei sehr kleinen Abständen abstoßend sind. Die untersuchte Stoßenergieabhängigkeit dieses Reaktionskanals (siehe Fig. 6.6) deutet darauf hin, daß diese Reaktion über eine innere Kreuzung abläuft. Bei kleiner Stoßenergie wird der nötige kleine Abstand der Stoßpartner wegen der gegenseitigen Abstoßung nicht mehr erreicht, was im Experiment mit einem Aussterben dieses Reaktionskanals mit kleinerer Stoß-

energie einhergeht.

Der schon erwähnte Teil des Spektrums mit Energiedefekten größer als + 3 eV muß der Transferionisation zugeordnet werden (siehe Fig. 6.2). Reaktionskanäle, die einem reinen Elektronentransfer entsprechen, könnten über metastabile Ne^{2+} -Ionen im ^1D -Zustand nur zu Energiedefekten kleiner als + 5.2 eV führen, was nur eine Erklärung der Maxima Va und Vb liefern würde. In Fig. 6.4 ist der Bereich des Spektrums mit ΔE -Werten größer als 3 eV dargestellt.

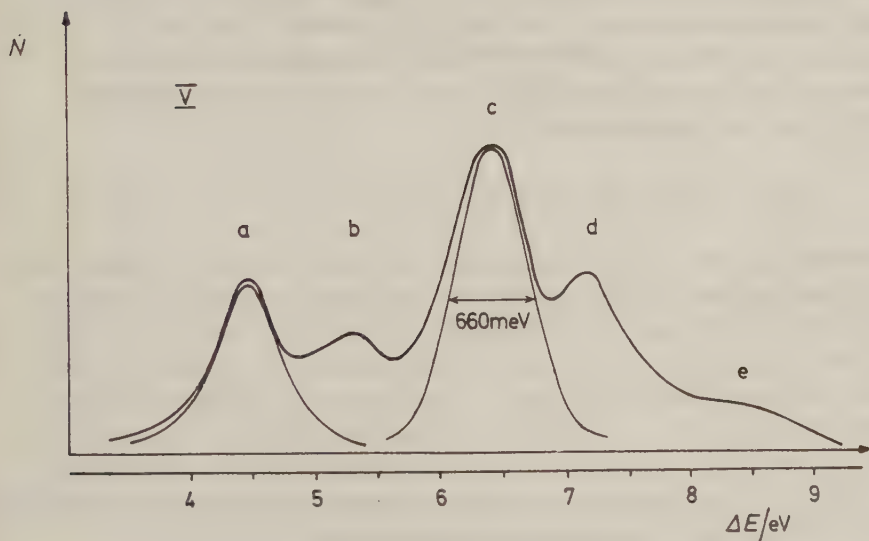


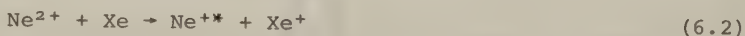
Fig. 6.4 Ne^+ Translationsspektrum, das der Transferionisation des Stoßsystems Ne^{2+}/Xe entspricht

Dieses Spektrum besteht aus fünf deutlich erkennbaren Maxima. Eine Trennung einzelner Verteilungen trotz besserer apparativer Auflösung gelingt nicht. Die Halbwertsbreite der einzelnen (nicht aufgelösten) Maxima kann auf 600 meV bis 700 meV abgeschätzt werden.

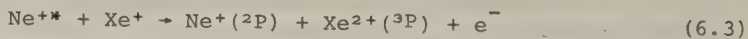
Die Struktur sowie die energetische Lage dieses Spektrums kann nicht erklärt werden, wenn eine direkte molekulare Transferionisation (Prozeß I, siehe Abschnitt 2.3.2) vom Eingangszustand

($\text{Ne}^{2+}(^3\text{P}) + \text{Xe}(^1\text{S}_0)$) zum Kontinuumszustand ($\text{Ne}^{+}(^2\text{P}) + \text{Xe}^{2+}(^3\text{P}) + \text{e}^{-}$) vorläge. Gemessene Energiedefekte zwischen + 4 eV und + 8 eV würden im Falle des direkten molekularen Transferionisationsprozesses den Kernabstand, wo Übergänge stattfinden, auf Werte zwischen 7 a_0 und 14 a_0 festlegen. Wegen der schwachen Kopplung der Stoßpartner bei den genannten Abständen sollte die Übergangswahrscheinlichkeit sehr klein sein. Aus diesem Grund ist die direkte molekulare Transferionisation nicht sehr wahrscheinlich, zudem könnten die auftretenden fünf Maxima im Transferionisationsspektrum nicht erklärt werden. Auch metastabile Ne^{2+} Projektile können aus den genannten Gründen zur Erklärung des Spektrums nicht herangezogen werden.

Um den experimentellen Befund zu verstehen, kann ein Zwei-Stufen-Prozeß herangezogen werden, wie schon von Niehaus und Ruf^{7,51} im Stoßsystem He^{2+}/Hg vorgeschlagen wurde. Während eines Stoßes wird im ersten Schritt ein Elektron in einen angeregten Ne^{+*} Zustand ($^2\text{S}, ^2\text{P}, ^4\text{P}, 3\text{s}, ^2\text{D}$) eingefangen.



Ein bestimmter Anteil der umgeladenen Projektile verbleibt beim Auslaufen des Systems in den angeregten Zuständen, was der experimentelle Nachweis gezeigt hat (Maxima I bis IV und VI bis VIII). Diese Zustände liegen auch bei kleinen Kernabständen ($R \approx 5 a_0$) im Kontinuum der durch Transferionisation entstehenden Molekülzustände. Ist die Kopplung der molekularen Zustände stark genug, so wird der Übergang zum Kontinuumszustand sehr wahrscheinlich. In einem Teil der Stöße wird das gebildete Xe^{+} -Ion in einem Stoß ähnlich dem der Penning-Ionisation⁵² ein zweites Mal ionisiert.



Ordnet man den gemessenen Maxima Va bis Ve jeweils einen autoionisierenden Molekülzustand zu, so legt man den Abstand der Stoßpartner fest, bei dem das Elektron emittiert wird (siehe Fig. 6.5). Die eingezeichnete Pfeillänge (Fig. 6.5) am Autoionisationsort gibt die Energie des emittierten Elektrons an. Gestrichelt ist die zugehörige Kontinuumspotentialkurve des ($\text{Ne}^{+}/\text{Xe}^{2+}$)-Systems dargestellt.

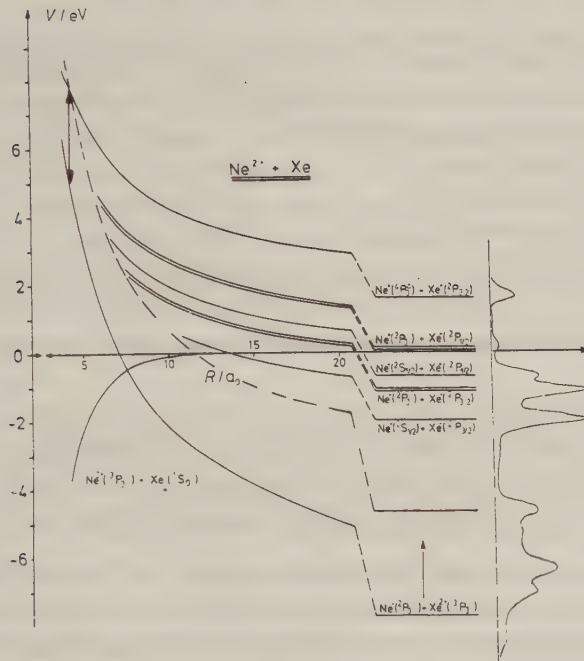


Fig. 6.5 Ausschnitt des Potentialkurvenschemas Ne^{2+}/Xe
 Die Kontinuumpotentialkurve (gestrichelt), die zur Autoionisation des $\text{Ne}^{+*}({}^4\text{P}^0)/\text{Xe}^{+}({}^2\text{P}_{3/2})$ gehört, ist eingezeichnet. Die Pfeillänge entspricht der Energie emittierter Elektronen

In Tabelle 6.2 sind Transferionisationsreaktionskanäle, erwartete zugehörige Elektronenenergien und Autoionisationsabstände angegeben. Die berechneten Autoionisationsabstände liegen alle nahe bei 5 a.o. Dieser Wert ist in sehr guter Übereinstimmung mit experimentellen Daten von Niehaus und Ruf⁷, die aus Untersuchungen am System He^{2+}/Hg gewonnen wurden.

Die Verteilung V_e (siehe Fig. 6.4) liegt bei einem Energiedefekt von

Max.Nr.	Autoionisierender Zustand	$\Delta E/\text{eV}$ (ION)	ϵ/eV	R_c/a_0
V a	$\text{Ne}^{**}(3p^2P^o) + \text{Xe}^+(2P_{3/2}) - \text{Ne}^+ + \text{Xe}^{2+} + e^-$	4.5	3.2; 2.2; 2.0	4.5
b	$\text{Ne}^{**}(3s^2P) + \text{Ne}^{**}(2P_{1/2}) -$	5.1	2.6; 1.6; 1.4	5.2
c	$\text{Ne}^{**}(3s^2P) + \text{Xe}^+(2P_{3/2}) -$	6.3	1.4; 0.4; 0.2	5.3
d	$\text{Ne}^{**}(2p^2S) + \text{Xe}^+(2P_{3/2}) -$	7.1	0.6	5.4
e	$\text{Ne}^{**}(3s^1D) + \text{Xe}^+(2P_{3/2}) -$	8.3	2.8; 1.8; 1.6	4.2

Tabelle 6.2 Transferionisations-Reaktionskanäle im Stoßsystem Ne^{2+}/Xe

etwa + 8.3 eV. Sie muß der Autoionisation eines gebildeten Molekülzustands entsprechen, der durch Umladung des metastabilen $\text{Ne}^{2+}(^1D_2)$ -Ions entsteht. Ordnet man Maximum Vc dem Zustand $(\text{Ne}^{**}(3s^1D) + \text{Xe}^+(2P_{3/2}))$ zu, so erhält man einen Übergangsabstand von ca 4 a_0 .

Die gemessenen Maxima Va bis Ve sind gegenüber den Verteilungen, die reinen Elektroneneinfangreaktionen entsprechen, verbreitert. Nach Berücksichtigung des apparativen Auflösungsvermögens ergibt sich eine zusätzliche Halbwertsbreite von ca. 550 meV. Eine zusätzliche Unschärfe der beobachteten Maxima hat zwei Gründe:

- a) Die Lebensdauer τ autoionisierender Zustände verursacht eine natürliche Verbreiterung δE_n . Mit der Unschärfereaktion findet man:

$$\delta E_n \approx \hbar/\tau \quad (6.4)$$

- b) Da die Autoionisation während des Stoßes erfolgt, führen verschiedene Autoionisationsabstände zu unterschiedlichen Energien emittierter Elektronen. Dies hat seine Ursache in der unterschiedlichen Steigung der Potentialkurven vom Autoionisationszustand und Kontinuumszustand (siehe Fig. 6.5). Findet die Autoionisation in einem Abstandsbereich ΔR statt, so werden die Elektronen- und entsprechend Ionentranslationsspektren eine Energieverbreiterung erfahren.

Sollte die experimentell bestimmte Verbreiterung von 550 meV seinen Ursprung nur in Grund a) haben, so ergäbe sich eine Lebensdauer von etwa 10^{-15} s. Ist dagegen der Übergangsbereich ΔR für die Verbreiterung verantwortlich, so ergibt sich unter Berücksichtigung der angenäherten Potentialkurven ein Übergangsbereich von etwa $0.5 a_0$. Die gemessene Halbwertsbreite von etwa 550 meV setzt sich aus beiden Komponenten zusammen. Eine Zerlegung der gemessenen Halbwertsbreite ist schwierig, da die Lebensdauer des Autoionisationszustands vom Abstand der Stoßpartner abhängt. Aus dem Meßwert kann aber geschlossen werden, daß der relevante Bereich, in dem Autoionisation auftreten kann, im Stoßsystem Ne^{2+}/Xe kleiner oder höchstens gleich $0.5 a_0$ sein muß bei Zugrundelegung der genäherten Potentialkurven. Dies darf man schließen, da ein Teil der Verbreiterung durch die kurze Lebensdauer des Zustands verursacht werden kann.

Bei den untersuchten Stoßenergien wird der Bereich von $0.5 a_0$ in Zeiten von $4 \dots 7 \times 10^{-16}$ s durchlaufen. Da ein erheblicher Anteil (ca. 30 %) durch Elektronentransfer gebildeter Quasimoleküle autoionisiert, sollte die mittlere Lebensdauer in der Größenordnung von einigen 10^{-15} s liegen. Die daher resultierende natürliche Energieunschärfe beträgt etwa 250 meV. Verwendet man diesen abgeschätzten Wert, so ergibt sich für die Verbreiterung, die durch den Übergangsbereich ΔR festgelegt wird, ein Wert von etwa 500 meV. Sehr wahrscheinlich ist daher hauptsächlich ein Übergangsbereich ΔR von etwa $0.5 a_0$ für die Verbreiterung der Maxima des Transferionisationsspektrums verantwortlich.

Bei einer Stoßenergie von $E_{\text{lab}} = 4$ keV haben Morgenstern und Mitarbeiter⁹ die Elektronenemission im System Ne^{2+}/Xe untersucht. Das gefundene Elektronenspektrum ist durch eine dominante Autoionisationslinie des doppelt angeregten $\text{Ne}^{***}2p^3(^4S)3s^2$ -Zustands geprägt. Der Elektronenenergiebereich unterhalb 3 eV, welcher eine ähnliche Struktur wie in Tabelle 6.2 zeigen sollte, ist

nicht dargestellt. In dem beschriebenen Ionentranslationsspektrum ist kein Maximum, das mit der Bildung des oben erwähnten Ne^{***} korreliert wäre, gefunden worden. Ein Grund dafür kann sein, daß der Nachweiswinkel 0° beträgt, denn die Bildung des doppelt angeregten Ne^{***} -Zustands läuft mit einem stark endothermen Energie-defekt von ~ 34 eV ab. Daher könnten für diese Reaktion sehr kleine Kernabstände nötig sein, die zu größeren Streuwinkeln der umgeladenen Projektile im Laborsystem führen.

Weiterhin ist untersucht worden, wie sich der relative differentielle Wirkungsquerschnitt ($\vartheta = 0^\circ$) als Funktion der Stoßenergie verhält. In Fig. 6.6 sind gemessene Energieverteilungen der gebildeten Ne^+ -Ionen für verschiedene Stoßenergien im Schwerpunktsystem (E_{cm}) zu sehen.

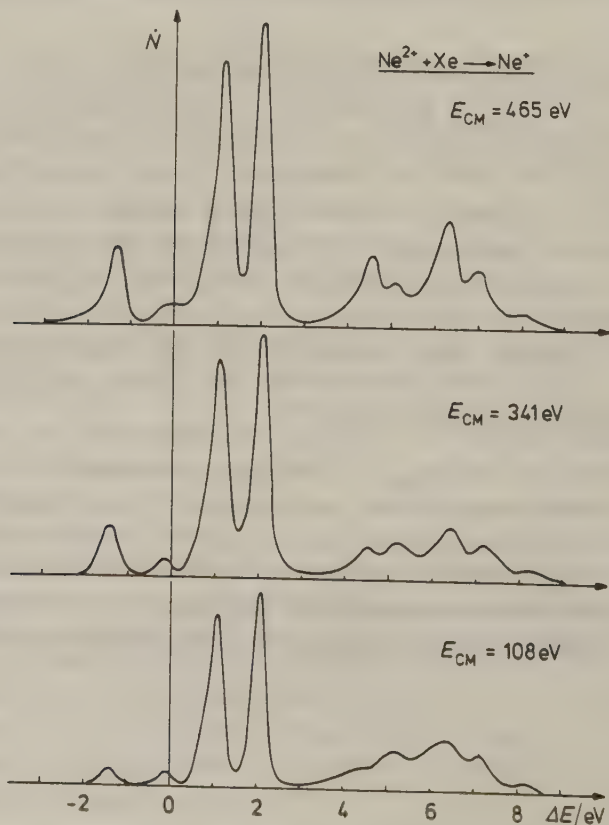


Fig. 6.6 Energieabhängigkeit der gemessenen Ne^+ -Translationsspektren aus Ne^{2+}/Xe -Stößen

Der relative Wirkungsquerschnitt nimmt im Bereich von $E_{cm} = 465 \text{ eV}$ bis $E_{cm} = 108 \text{ eV}$ auf etwa 60 % ab.

Der Anteil der über Transferionisation gebildeten Ne^+ -Ionen liegt im untersuchten Stoßenergiebereich bei etwa 30 %. Ein schwacher Anstieg dieses Anteils auf etwa 35 % bei kleinerer Stoßenergie scheint verständlich, da die Aufenthaltszeit im instabilen Kernabstandsbereich mit kleinerer Stoßgeschwindigkeit etwa um den Faktor zwei anwächst.

Deutlich ist zu sehen, daß die Produktion von Ne^+ -Ionen über Reaktionskanal I (Energiedefekt $\Delta E = -1.6 \text{ eV}$) ähnlich wie das korrespondierende Maximum des Transferionisationskanals V a mit der Stoßenergie stark abnehmen. Das ähnliche Verhalten der beiden Kanäle unterstützt die vorgeschlagene Interpretation der Spektren sowie die in Tabelle 6.2 gegebene Maximumkorrelation. Da der Elektronentransfer in dem $^4\text{P}_0$ -Zustand des Ne^{++} (Maximum bei $\Delta E = -1.6 \text{ eV}$) bei kleiner Stoßenergie immer unwahrscheinlicher im Vergleich zu den anderen Reaktionskanälen wird, können entsprechend weniger gebildete Quasimoleküle autoionisieren, so daß auch das korrelierte Transferionisationsmaximum verschwindet.

Vergleicht man diese Ergebnisse mit der Theorie von Kishinevskii und Parilis³² (siehe Abschnitt 2.3), so kann folgendes festgehalten werden: Der untersuchte Stoßgeschwindigkeitsbereich liegt bei etwa $10^6 \text{ cm}\cdot\text{s}^{-1}$ bis $10^7 \text{ cm}\cdot\text{s}^{-1}$. Die beschriebene Theorie sagt voraus, daß in diesem Bereich die molekulare Zwei-Stufen-Transferionisation der dominante Reaktionskanal sein soll, wie das Experiment bestätigt. Die experimentelle Untersuchung zeigte, daß die direkte molekulare Transferionisation (Prozeß I) in dem genannten Geschwindigkeitsbereich in System Ne^{2+}/Xe so gut wie keine Bedeutung hat. Theorie und Experiment sind in guter qualitativer Übereinstimmung.

6.2 Umladung von Ne^{2+} -Ionen in Argon und Krypton

Die Stoßsysteme Ne^{2+}/Ar und Ne^{2+}/Kr sind einerseits zur Kalibrierung der Energieskala im System Ne^{2+}/Xe , aber auch zur Klärung der entsprechenden Reaktionskanäle untersucht worden.

In Fig. 6.7 ist das gemessene Translationsspektrum gebildeter Ne^+ -

Ionen durch Ne^{2+}/Kr -Stöße dargestellt. Eine Struktur, die aus fünf Maxima besteht, ist deutlich zu erkennen.

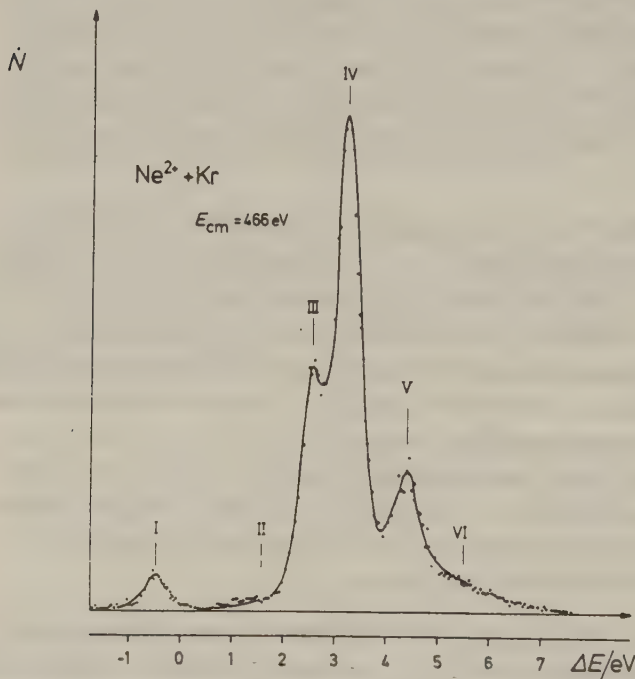


Fig. 6.7 Translationsspektrum gebildeter Ne^+ -Ionen in Ne^{2+}/Kr -Stößen

Zusammen mit den Umladungsspektren der Systeme Ne^{2+}/Xe und Ne^{2+}/Ar kann die Energieskala eindeutig festgelegt werden. Das Translationspektrum der Ne^+ -Ionen ist demnach zu charakterisieren durch die Umladung von metastabilen Ne^{2+} -Ionen im $^1\text{D}_2$ -Zustand.

Die Grundzustandsreaktion ($\text{Ne}^{2+}({}^3\text{P}) + \text{Kr}({}^1\text{S}_0) \rightarrow \text{Ne}^+({}^2\text{P}) + \text{Kr}^+({}^2\text{P})$) führt zu einem ungünstigen Energiedefekt von + 26.3 eV, wenn das Projektil Ne^{2+} im Grundzustand vorliegt. Anregungszustände des gebildeten Ne^{+*} -Ions werden besetzt, wenn Energiedefekte kleiner als + 0.1 eV zur Umladungsreaktion beitragen. Targetanregungsprozesse (Kr^{+*}) verlaufen exotherm bis zur Transferionisationsgrenze bei etwa + 2.5 eV. Daher liegen nur die Reaktionskanäle, die zur Anregung des gebildeten Targetions Kr^{+*} führen, günstig, wenn Grundzustandsionen umgeladen werden.

Findet die Umladung hingegen von metastabilen Ne^{2+} -Ionen im $^1\text{D}_2$ -Zustand statt, so liegen die zugehörigen Energiedefekte im Vergleich zu den oben genannten Werten um 3.2 eV höher, d.h. die Potentialkurvenkreuzungen liegen in einem Bereich, wo die Kopplung bez. Elektronentransfer stark ist. Folgende Maxima können durch Messung des Energiedefekts Elektroneneinfangreaktionskanälen zugeordnet werden:

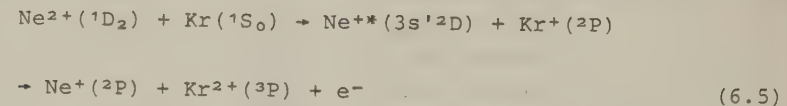
Projektil	Target	Reaktionsprodukte	$\Delta E/\text{eV}$	Max.Nr.
$\text{Ne}^{2+}(^3\text{P})$	$+$ Kr ($^1\text{S}_0$)	$\rightarrow \text{Ne}^{++}(^4\text{P}, ^2\text{P}, ^2\text{S}) + \text{Kr}^+(^2\text{P})$	$- 0.2 \dots - 1.0$	I
$\text{Ne}^{2+}(^1\text{D})$	$+$ Kr ($^1\text{S}_0$)	$\rightarrow \text{Ne}^{++}(3s\ ^2\text{D}) + \text{Kr}^+(^2\text{P}_{3/2})$	$- 0.5$	I
		$- \quad (2\text{P}) \quad + \quad (2\text{P}_{3/2})$	$+ 1.8 \dots 2.0$	II
		$- \quad (2\text{S}, ^4\text{P}) + (2\text{P}_{1/2})$	$+ 2.5$	III
		$- \quad (2\text{P}) \quad + \quad (2\text{P}_{3/2})$	$+ 2.5$	III
		$- \quad (2\text{S}, ^4\text{P}) + (2\text{P}_{3/2})$	$+ 3.2$	IV

Tabelle 6.3 Elektroneneinfangkanäle im Stoßsystem Ne^{2+}/Kr

Der energetische Abstand der Maxima III und IV entspricht der Spin-Bahn-Aufspaltung des $\text{Kr}^+(^2\text{P})$ -Zustands von 0.63 eV. Bemerkenswert ist, daß die Verteilungen III und IV der Bildung von Ne^{++} im $^2\text{S}_{1/2}$ -Zustand entsprechen. Im Gegensatz zum Stoßsystem Ne^{2+}/Xe findet die Umladung über metastabile $\text{Ne}^{2+}(^1\text{D}_2)$ -Ionen statt. Jedoch ist in beiden Stoßsystemen die Konfiguration des Ne^{2+} -Rumpfes des Primärions zusätzlich zum Elektronentransfer während des Stoßes geändert worden.

Offensichtlich setzt sich der erzeugte Ionenstrahl aus Ne^{2+} -Grundzustandsionen und metastabilen $^1\text{D}_2$ -Ionen zusammen. Da die Reaktionskanäle für das Grundzustandsion nur mit sehr ungünstig liegenden Kurvenkreuzungen korreliert sind, ist das gemessene Spektrum durch die günstiger liegenden Reaktionskanäle, die der Umladung metastabiler Ne^{2+} - $^1\text{D}_2$ -Ionen zuzuordnen sind, bestimmt. Ein ähnlicher Sachverhalt ist in Abschnitt 5.2 für die Systeme Ar^{2+}/He und Ar^{2+}/Ne diskutiert worden.

Die Verteilungen V und VI können nicht eindeutig interpretiert werden. Es ist möglich, daß auch in Ne^{2+}/Kr -Stößen die molekulare Transferionisation über einen autoionisierenden Zwischenzustand, der im gleichen Stoß durch Elektroneneinfang besetzt wird, abläuft. Maximum V kann gebildet werden über folgenden Reaktionskanal:



Der gemessene Energiedefekt von + 4.4 eV und die Korrelation mit dem $3\text{s}'^2\text{D}$ -Zustand des Ne^{+*} führt zu einem Autoionisationsabstand der Stoßpartner bei etwa 5.5 a₀. Dieser Wert ist in guter Übereinstimmung mit den Ergebnissen, die im System Ne^{2+}/Xe gefunden wurden. Das Maximum VI kann sehr wahrscheinlich in dieser Form nicht erklärt werden, da der minimal mögliche Autoionisationsabstand, der sich aus den Daten ergibt, bei einem Wert von 7 a₀ liegt. Dort sollte die Kopplung für eine Autoionisation schon klein sein. Die Maxima V und VI können auch durch Umladungsreaktionen entstehen bei denen ein Elektron in den Grundzustand des Ne^{+} -Ions transferiert wird und zusätzlich das gebildete Kr^{+*} -Ion hoch angeregt wird. Die breiten aber diskreten Maxima entsprechen der Bildung von Kr^{+*} -Ionen mit einem angeregten Elektron im $n = 8 \dots 13$ Zustand (n : Hauptquantenzahl) (Maxima V, $\Delta E = + 4.4$ eV) und im 7s bzw. 5g-Zustand (Maxima VI).

In Fig. 6.8 ist das gemessene Ne^{+} -Translationsspektrum abgebildet, das durch Umladung von Ne^{2+} -Ionen in Argon entsteht.

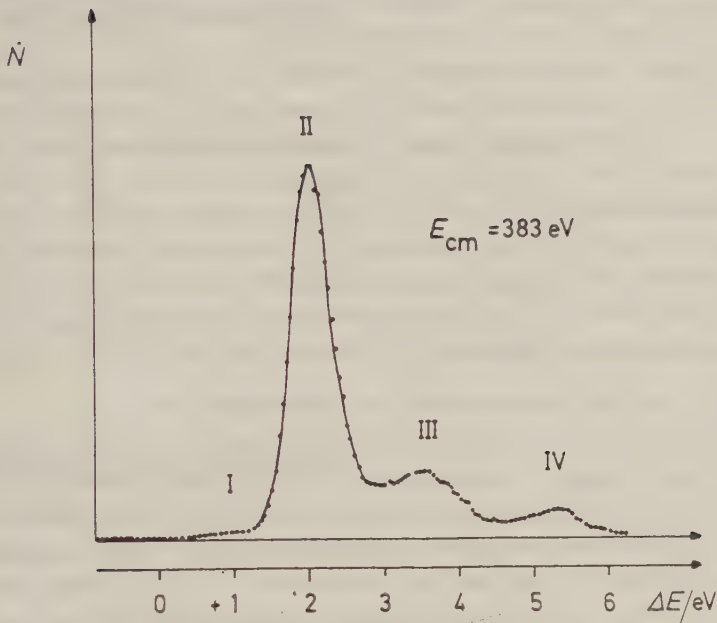


Fig. 6.8 Ne^+ -Translationsspektrum des Stoßsystems Ne^{2+}/Ar

Die Reaktionskanäle der gemessenen Energiedefekte können nicht genau festgelegt werden, da einerseits Targetanregungszustände und Einfangreaktionen über metastabile Projektile mit ähnlicher Wärmetönung ablaufen. Die energetische Breite, die nicht durch das Auflösungsvermögen des Analysators bestimmt ist, ist erklärbar, da jeweils Gruppen möglicher Endzustände zu Verteilungen führen, die nicht aufgelöst werden können (energetischer Abstand kleiner als 0.1 eV). Folgende Reaktionen können den gemessenen Maxima zugeordnet werden (Tabelle 6.4).

Projektil	Target	Reaktionsprodukte	$\Delta E/\text{eV}$	Max.
$\text{Ne}^{2+}({}^3\text{P}) + \text{Ar}({}^1\text{S}_0)$		$\rightarrow \text{Ne}^+({}^2\text{P}) + \text{Ar}^{2+}(3s^33p^*({}^3\text{P})4p)$	+ 5.3...+ 6.0	I
		$\rightarrow \text{Ne}^+({}^2\text{P}) + \text{Ar}^{2+}({}^1\text{D})4p)$	+ 3.9...	I
		$\rightarrow \text{Ne}^+({}^2\text{P}) + \text{Ar}^{2+}({}^1\text{D})4d)$	... + 3.0	I
		$\rightarrow \text{Ne}^+({}^2\text{P}) + \text{Ar}^{2+}({}^3\text{P})4d)$	+ 1.8...+ 2.6	I
		$\rightarrow \text{Ne}^+({}^2\text{P}) + \text{Ar}^{2+}({}^3\text{P})4f)$	+ 1	
$\text{Ne}^{2+}({}^1\text{D}_2) + \text{Ar}({}^1\text{S}_0)$		$\rightarrow \text{Ne}^{2+}({}^2\text{S}) + \text{Ar}^+({}^2\text{P})$	+ 1.6	I
		$\rightarrow \text{Ne}^{2+}({}^4\text{P}) + \text{Ar}^+({}^2\text{P})$	+ 1.3	:
		$\rightarrow \text{Ne}^{2+}({}^2\text{P}) + \text{Ar}^+({}^2\text{P})$	+ 0.7	:

Tabelle 6.4 Mögliche Reaktionskanäle im Stoßsystem Ne^{2+}/Ar

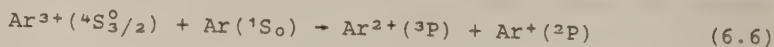
Die in Tabelle 6.4 angegebenen Reaktionskanäle sind nicht einzeln identifiziert worden, lediglich zugehörige Energiedefekte fallen in den gemessenen Bereich. Sehr wahrscheinlich spielt die Target-anregung in diesem Stoßsystem eine große Rolle. Ob die Umladung metastabiler Ne^{2+} -Ionen auf das gemessene Spektrum einen Einfluß hat, kann nicht entschieden werden (siehe Tabelle 6.4).

6.3 Umladung von Ar^{3+} -Ionen in Argon und Neon

6.3.1 Charakteristika der Stoßsysteme

Die Stoßsysteme Ar^{3+}/Ar und Ar^{3+}/Ne zeichnen sich beide dadurch aus, daß Transferionisationsprozesse mit negativen Energiedefekten (endotherme Reaktion) korrelieren.

Im System Ar^{3+}/Ar läuft die Grundzustandsreaktion



mit einem Energiedefekt von etwa + 25 eV ab. Wird das Ar^{2+} -Ion im ${}^3\text{D}^0$, ${}^5\text{D}$ oder ${}^1\text{P}$ Zustand gebildet, so liegen günstige Energiedefekte von + 5 eV bis + 8 eV vor. Neben Grundzustandsionen ($\text{Ar}^{3+}({}^4\text{S}_{3/2})$) kann eine Kontamination des Primärstrahls mit metastabilen Ar^{3+} -

Ionen im $2D^{\circ}$ (2.6 eV über dem Grundzustand) oder $2P^{\circ}$ (4.3 eV über dem Grundzustand) Ursache für zusätzliche Reaktionskanäle im erwähnten Energiedefektbereich sein.

Werden bei der Umladung von $Ar^{3+}(^4S_{3/2})$ -Ionen im Neon Grundzustandsionen gebildet ($\rightarrow Ar^{2+}(^3P) + Ne^{+}(^2P)$), so läuft der Prozeß - wie im zuvor beschriebenen System - stark exotherm ab ($\Delta E = + 19.3$ eV). Dieser Reaktionskanal ist daher sehr unwahrscheinlich. Nur die Bildung von Ar^{2+*} -Ionen im 3P_0 -Zustand führt zu einem günstigen Energiedefekt von + 5.2 eV. Metastabile Ar^{3+} -Projekteile im Primärstrahl können dazu beitragen, daß höhere Anregungszustände des Ar^{2+*} -Ions besetzt werden, da Energiedefekte zwischen + 4 eV und + 8 eV sich für verschiedene Reaktionskanäle ergeben.

6.3.2 Kalibrierung der Energieskala

Zur eindeutigen Festlegung der Energieskala gemessener Spektren sind Testreaktionen nötig. Es konnten jedoch keine Umladungsreaktionen von Ar^{3+} -Ionen mit Edelgasatomen gefunden werden, die über einen eindeutigen Reaktionskanal ablaufen. Alle untersuchten Spektren sind relativ kompliziert. Aus diesem Grund wurden Vergleiche zwischen berechenbaren Energiedefekten und gemessenen Strukturen zu Rate gezogen. Aus der relativen Lage der Translationsspektren - resultierend aus Ar^{3+}/Ne - und Ar^{3+}/Ar -Stößen - zueinander konnte die Energieskala festgelegt werden. Da eine Absolutkalibrierung aber nicht möglich war, muß die Zuordnung von Reaktionskanälen und gemessenen Verteilungen im Translationsspektrum als sehr wahrscheinliche Erklärung betrachtet werden.

6.3.3 Meßergebnisse und Diskussion der Umladungsspektren des Systems Ar^{3+}/Ar

In Fig. 6.9 ist das gemessene Ar^{2+} -Ionentranslationsspektrum von Ar^{3+}/Ar -Stößen zu sehen. Im Spektrum wird eine komplizierte Struktur beobachtet. Die Entfaltung mit dem Primärstrahlprofil liefert 12 Maxima. Die Halbwertsbreite von 730 meV der einzelnen Maxima ist durch die energetische Breite des Ar^{3+} -Primärionenstrahls begrenzt. Der dominante

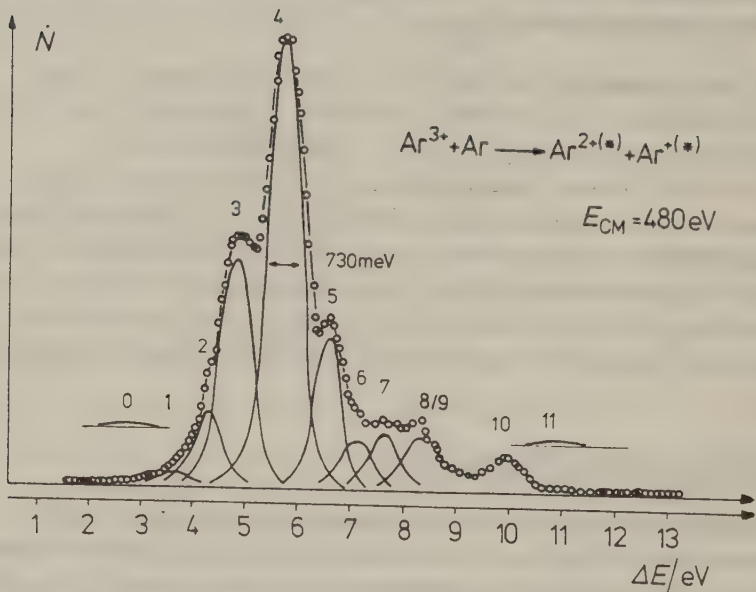
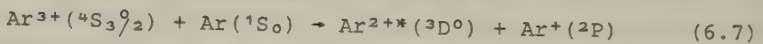


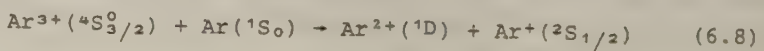
Fig. 6.9 Ar^{2+} -Translationsspektrum nach Ar^{3+}/Ar -Stößen

Reaktionskanal liegt bei einem Energiedefekt von etwa + 5.7 eV. Folgende Umladungsreaktion entspricht diesem Energiedefekt:



Der Kreuzungsabstand der zugehörigen Potentialkurven liegt bei 9.7 a_0 .

Targetanregungsprozesse (Ar^{+*}) und gleichzeitiger Elektronentransfer in den Grundzustand des $\text{Ar}^{2+}({}^3\text{P})$ -Ions spielen sehr wahrscheinlich in dem gemessenen Translationsspektrum eine Rolle, da einzelne Verteilungen nur so erklärt werden können (siehe Tabelle 6.5). Herauszuheben ist die Bildung des $\text{Ar}^{+*}({}^2\text{S}_{1/2})$ -Zustands des umgeladenen Targets (Maximum 10). In dieser Reaktion wird ein inneres 3s-Elektron des Argonatoms zum Ar^{3+} -Ion transferiert.



Neben dieser Targetanregung, die durch einen Einelektronenprozeß charakterisiert ist, werden sehr wahrscheinlich folgende Anregungszustände des Targetions Ar^{+*} besetzt: 4D und 4P . Zusätzlich zum Transfer eines Elektrons wird bei diesen Reaktionen ein Targetelektron angeregt.

Metastabile Projektilzustände, insbesondere der $2p^0$ -Zustand des Ar^{3+} -Ions, führen zu Energieverteilungen der umgeladenen Ar^{2+} -Ionen mit Energiedefekten von etwa + 4.8 eV (Maximum 3), + 5.6 eV (Maximum 4), + 6.5 eV (Maximum 5) und + 8.6 eV (Maximum 8/9). Ob der nächste energetisch höherliegende metastabile Projektilzustand $2p^0$ eine Rolle in dem gemessenen Spektrum spielt, kann nicht entschieden werden.

Generell können einzelne auftretende Maxima durch Beiträge verschiedener Reaktionskanäle entstehen. Der Einfluß von metastabilen Projektilen ist im Vergleich zum Stoßsystem Ne^{2+}/Xe auf das gemessene Spektrum größer. Dies kann einerseits an einem größeren Anteil metastabiler Ionen im Primärstrahl liegen, andererseits liegen entsprechende Kanäle in einem günstigeren ΔE -Bereich.

Projektil	Target	Reaktionsprodukte	ΔE /eV	Max.Nr.
$Ar^{3+}(^4S_{3/2}^0)$	$+ Ar(^1S_0)$	$\rightarrow Ar^{2+*}(^3S_1) + Ar^{+}(^2P)$	+ 2.7	0
		$(^5S_2) + (^2P)$	+ 3.5	1
		$(^3D^0) + (^2P)$	+ 5.7	4
		$(^5D) + (^2P)$	+ 7.2	6
		$(^3P^0) + (^2P)$	+ 10.8	11
		$(^1D_2) + Ar^{+*}(^2S_{1/2})$	+ 9.9	10
		$(^1S_0) + (^2S_{1/2})$	+ 7.5	7
		$(^1S_0) + Ar^{+*}(^4D)$	+ 4.7	3
		$(^1D_2) + (^4D)$	+ 7.0	6
		$(^3P) + (^4D)$	+ 8.7	8/9
		$(^1S_0) + Ar^{+*}(^4P)$	+ 4.4	2
		$(^1D_2) + (^4P)$	+ 6.8	5
		$(^3P) + (^4P)$	+ 8.4	8/9
	$+ Ar(^1S_0)$	$\rightarrow Ar^{2+*}(^3F) + Ar^{+}(^2P)$	+ 4.8	3
		$(^3S_1) + (^2P)$	+ 5.6	4
		$(^5S) + (^2P)$	+ 6.5	5
		$(^3D^0) + (^2P)$	+ 8.6	8/9

Tabelle 6.5 Reaktionskanäle im Stoßsystem Ar^{3+}/Ar

In Tabelle 6.5 sind Reaktionskanäle, berechnete Energiedefekte (nach Daten von Moore⁵⁰) und Maximazuordnung angegeben.

Die Translationsspektren wurden bei verschiedenen Stoßenergien untersucht. Im Bereich zwischen $E_{cm} = 180$ eV und $E_{cm} = 600$ eV nimmt der relative Wirkungsquerschnitt für $\vartheta = 0^\circ$ mit kleineren Stoßenergien um etwa einen Faktor fünf ab. Die Beiträge der einzelnen Maxima zum Gesamtspektrum bleiben nahezu gleich.

6.3.4 Meßergebnisse und Diskussion der Umladungsspektren des Systems Ar^{3+}/Ne

In Fig. 6.10 ist das gemessene Translationsspektrum bei einer Stoßenergie von $E_{cm} = 300$ eV dargestellt.

Die Zuordnung von gemessenen Energieverteilungen und Reaktionskanälen zeigt, daß das Translationsspektrum durch die Umladung metastabiler Ar^{3+} -Ionen stark beeinflusst ist. Der Hauptreaktionskanal (Maxima 3) mit $\Delta E = + 7.7$ eV wird durch folgende Reaktion beschrieben:

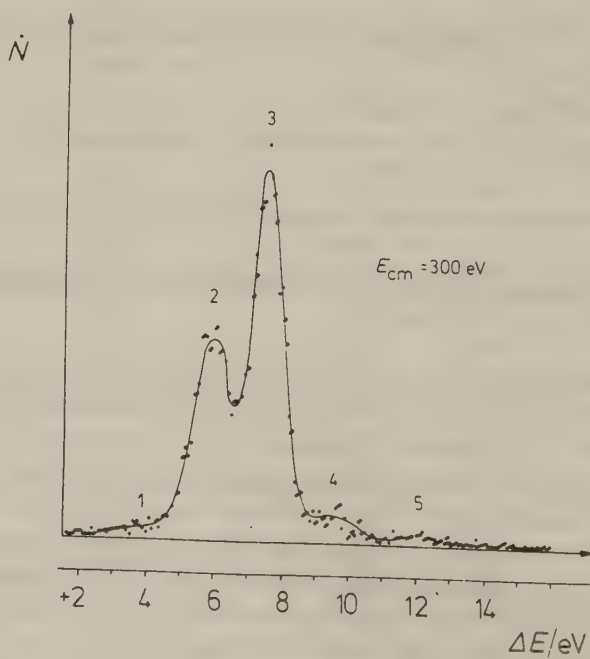
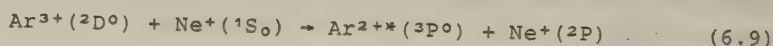


Fig. 6.10 Translationsspektrum gebildeter Ar^{2+} -Ionen des Stoßsystems Ar^{3+}/Ne

Dieser Reaktionskanal entspricht der Umladung des metastabilen Ar^{3+} -Ions im $^2D^0$ -Zustand in Neon. Die Maxima 2 und 4 können erklärt werden, wenn das nächste energetisch höherliegende metastabile Ar^{3+} -Ion in $^2P^0$ -Zustand zum Ar^{2+*} in 1P umgeladen wird. Zum Maximum 2 kann aber auch die Umladung des Grundzustandsions $\text{Ar}^{3+}(^4S_{3/2}^0)$ beitragen ($\Delta E = + 5.2$ eV). Offensichtlich ist der Einfluß metastabiler Projektilionen auf das Spektrum erheblich. Sehr wahrscheinlich liegt dies daran, daß die Kurvenkreuzungen der Reaktionskanäle mit metastabilen Projektilionen günstig im Vergleich zum Reaktionskanal mit Grundzustandsprojektilen liegen. Ähnlich wie im System Ar^{3+}/Ar sind Energiedefekte von 6 eV bis 8 eV günstig. Der entsprechende Kopplungsbereich liegt zwischen $R = 7 a_0$ und $9 a_0$.

In Tabelle 6.6 sind zugeordnete Reaktionskanäle, nach tabellierten Werten berechnete Energiedefekte (Moore⁵⁰) und Maximumnummer im gemessenen Spektrum angegeben. Die Entstehung des Maximums 5 (siehe Fig. 6.10) ist ungeklärt.

Projektil	Target	Reaktionsprodukt	$\Delta E/\text{eV}$	Max.Nr.
$\text{Ar}^{3+}(^4S^0)$	+	$\text{Ne}(^1S_0) \rightarrow \text{Ar}^{2+*}(^3P^0) + \text{Ne}^+(^2P)$	+ 5.2	2
$\text{Ar}^{3+}(^2D^0)$	+	$\text{Ne}(^1S_0) \rightarrow \text{Ar}^{2+*}(^1P^0) + \text{Ne}^+(^2P)$	+ 4.1	1
		$(^3P^0) + (^2P)$	+ 4.0	1
		$(^3P^0) + (^2P)$	+ 7.7	3
$\text{Ar}^{3+}(^2P^0)$	+	$\text{Ne}(^1S_0) \rightarrow \text{Ar}^{2+*}(^1P^0) + \text{Ne}^+(^2P)$	+ 5.8	2
		$(^3P^0) + (^2P)$	+ 9.3	4

Tabelle 6.6 Reaktionskanäle im System Ar^{3+}/Ne

7. Zusammenfassung

Eine Stoßapparatur wurde zur Messung hochaufgelöster Ionentranslationsspektren, die aus Elektronentransferreaktionen resultieren, aufgebaut. Untersucht wurde die Umladung zweifach- und dreifachgeladener Edelgasionen in Edelgastargets bei Stoßenergien (E_{cm}) zwischen 100 eV und 600 eV. Das verwendete Translationsspektrometer wurde mit bereits bekannten Reaktionen getestet, wobei sich sehr gute Übereinstimmungen mit Meßergebnissen anderer Autoren ergaben.

Folgende Ergebnisse können festgehalten werden:

1. Der jeweils erzeugte Primärionenstrahl setzt sich im allgemeinen aus Grundzustandsionen und metastabilen angeregten Ionen zusammen, wobei der absolute Anteil der einzelnen Komponenten nicht festgestellt werden konnte.
2. Je nach Lage der Potentialkurvenkreuzungen kann das Translationspektrum durch Umladung metastabiler Ionen oder Grundzustandsionen bestimmt sein. Der Energiedefekt einzelner Reaktionskanäle ist somit ein entscheidendes Kriterium für die Wahrscheinlichkeit einer Elektronentransferreaktion. Die untersuchten Stoßsysteme Ar^{2+}/He und Ar^{2+}/Ne zeigen, daß - bedingt durch die zugehörigen Energiedefekte - entweder die Umladung des metastabilen Ar^{2+} -Ions oder die des Grundzustandsions das Translationsspektrum bestimmt. Die Messung absoluter Wirkungsquerschnitte, insbesondere auch der totalen Wirkungsquerschnitte, ist daher nur möglich, wenn im Primärstrahl ein Ionenzustand vorliegt oder das genaue Verhältnis vorhandener Ionen verschiedener Zustände bekannt ist.
3. Im Stoßsystem Ne^{2+}/Xe werden zwölf verschiedene Reaktionskanäle beobachtet, die mit Elektronentransfer und Transferionisation beschrieben werden können. Das Spektrum wird durch Maxima dominiert, die der Bildung von angeregten Ne^{+*} -Zuständen ($2S, 2P$) durch Umladung des Ne^{2+} -Grundzustandsions entsprechen. Das gebildete Xe^{+} -Target liegt im $2P_{3/2}$ - und $2P_{1/2}$ -Zustand vor. Der Prozeß der Transferionisation muß in diesem System als Zweistufen-Prozeß beschrieben werden. Offensichtlich läuft die Transferionisation über autoionisierende molekulare Zustände ab, die zunächst durch Einelektronentransferprozesse im gleichen Stoß besetzt werden.

4. Die Translationsspektren von Ar^{2+} -Ionen, die durch Elektronentransfer in den Systemen Ar^{3+}/Ar und Ar^{3+}/Ne entstehen, haben einen komplizierten Charakter, so daß keine Absolutkalibrierung der Energieskala vorgenommen werden konnte. Metastabile Projektilzustände spielen in den untersuchten Systemen bei der Umladung offensichtlich eine wesentliche Rolle, wenn zugehörige Reaktionsenergie-defekte im günstigen Bereich zwischen + 6 eV und + 8 eV liegen.
5. Im untersuchten Stoßenergiebereich zwischen 100 eV und 600 eV (E_{cm}) laufen sowohl Reaktionen ab, bei denen der Ionenrump fzustand des Primärteilchens nach der Umladung erhalten bleibt, als auch Prozesse, bei denen dies nicht der Fall ist. Die sogenannte 'core'-Erhaltung ist in diesem Stoßenergiebereich nicht unbedingt gültig.
6. Erste Translationsspektren, die aus Stößen dreifachgeladener Ionen mit Atomen resultieren, sind in dieser Arbeit beschrieben. Die Energieauflösung beträgt etwa 700 meV. Um Interpretationen von Translationsspektren höhergeladener Stoßsysteme eindeutig vernehmen zu können, wäre es im Experiment wünschenswert, einerseits Primärionenstrahlen zu erzeugen, die nur einen Zustand enthalten; andererseits muß eine bessere Auflösung einzelner Maxima erreicht werden. Die letztere Forderung kann experimentell erfüllt werden, indem vor der Stoßzelle ein Kondensatorsystem - wie in dieser Arbeit beschrieben - als Strahlmonochromator eingesetzt wird. Jedoch muß man immer berücksichtigen, daß durch die Energieselektion Strahlintensität verlorengeht, die nötig ist, um die Meßsignale umgeladener Ionen verwerten zu können.

Referenzen

1. F.J. de Heer in: Atomic and Molecular Processes in Controlled Fusion, eds M.R.C. McDowell, A.M. Ferendeci; Plenum Press NY, S. 351 (1980)
2. G. Steigmann; Astrophysical J. 199, 642 (1975)
3. D. Anderson, J. McCullen, M.O. Scully, J.F. Seeby; Opt. Commun. 17, 227 (1976)
4. H.F. Beyer, R. Mann, F. Folkmann; J. Phys. B 14, L 377 (1981)
5. E.W.P. Bloemen, D. Dijkkamp, F.J. de Heer; J. Phys. B 15, 1391 (1982)
6. A. Brazuk, H. Winter; J. Phys. B 15, 2233 (1982)
7. A. Niehaus, M.W. Ruf; J. Phys. B 9, 1401 (1976)
8. P.M. Woerlee, T.M. El Sherbini, J.J. de Heer, F.W. Saris; J. Phys. B 12, L 235 (1979)
9. R. Morgenstern, A. Niehaus, G. Zimmermann; J. Phys. B 13, 4811 (1980)
10. A. Niehaus,; Comm. Atom. Moléc. Phys. 9, 153 (1980)
11. B.A. Huber; J. Phys. B 13, 809 (1980)
12. E.Y. Kamber, D. Mathur, J.B. Hasted; J. Phys. B 15, 263 (1982)
13. E.Y. Kamber, D. Mathur, J.B. Hasted; J. Phys. B 15, 2051 (1982)
14. W. Kahlert; Diplomarbeit Ruhr-Universität Bochum (1981)
15. E. Rille, H. Winter; J. Phys. B 13, L 543 (1980)
16. R.U. Janev in: Advances in Atomic and Molec. Phys. 12, 1 (1976)
17. S.E. Butler; Phys. Rev. A 23, 1 (1981)
18. M. Born, J.R. Oppenheimer; Ann. d. Physik 84, 457 (1932)
19. T.F. O'Malley in: Advanced Atomic and Molec. Phys. 7, 223 (1971)
20. R.A. Mapleton in: Theory of Charge Exchange; Wiley-Interscience, S. 37 (1972)
21. Yu. Demkov; Zh. Eksp. Teor. Fiz. 45, 159 (1963), [Sov. Phys. JETP 18, 138 (1964)]

22. L. Landau; Phys. Z. Sowjet 2, 46 (1932)
23. C. Zener; Proc. Roy. Soc. A 137, 696 (1932)
24. A. Russek; Phys. Rev. A 4, 1918 (1971)
25. R.E. Olson; J. Chem. Phys. 56, 2979 (1972)
26. R.E. Olson, A. Salop; Phys. Rev. A 14, 579 (1976)
27. M.I. Chibisov; JETP-Lett. 24, 56 (1976)
28. T.P. Grozdanov, R.K. Janev; Phys. Rev. A 17, 880 (1978)
29. H. Ryufuku, K. Sasaki, T. Watanabe; Phys. Rev. A 21, 745 (1980)
30. J. Vaaben, J.S. Briggs; J. Phys. B 10, L 521 (1977)
31. A. Salop, R.E. Olson; Phys. Rev. A 16, 1811 (1977)
32. L.M. Kishinevskii, E.S. Parilis; Sov. Phys. JETP 28, 1020 (1969)
33. S.T. Manson; Phys. Rev. 145, 35 (1966)
34. J.v. Neumann. E. Wigner; Z. Phys. 30, 467 (1929)
35. W. Hultzsh, W. Kronast, A. Niehaus, M.W. Ruf; J. Phys. B 12, 1821 (1979)
36. B. Fastrup; Methods of Exper. Phys. 17, 149 (1980)
37. J.B. Hasted in: Physics of Atomic Collisions; London Butterworth (1972)
38. B.A. Huber, H.J. Kahlert; J. Phys. B 13, L 159 (1980)
39. M.E. Haine, P.A. Einstein; Brit. Jour. of App. Phys. 3, 40 (1952)
40. O. Klemperer in: Electron optics; S. 72 ff, Cambridge University press. (1971)
41. J.R. Pierce : Theory and Design of Electron Beams; von Nostrand, New York (1949)
42. E. Harting, F.H. Read : Electrostatic Lenses; Elsevier Scientific Publishing Company, Amsterdam-Oxford, New York (1976)
43. H. Wollnik in: Focusing of Charged Particles; Vol. II, 163 ff, A. Septier, Academic Press., New York, London (1967)

44. B.A. Huber; Dissertation, Ruhr-Universität Bochum (1975)
45. Kuyatt, Simpson; Electron Monochromator Design, Rev. Si. Instr. 38, 103 (1967)
46. R.G. Wilson, G.R. Brewer in : Ion Beams with Applic. to Ion Implantation, J. Wiley & Sons, New York (1973)
47. M.H. Enge; Rev. of Sci. Instr. 35, 278 (1964)
48. B.A. Huber : Umladung von langsamen, mehrfachgeladenen Ionen in Neutralgasen; Forschungsbericht des Landes NRW Nr. 3151, Westdeutscher Verlag (1982)
49. V.V. Afrosimov, G.A. Leiko, M.N. Panov in: Electronics and Atomic Collisions; IXth ICPEAC, Seattle, S. 183 (1975), edited by J.S. Risley, R. Geballe
50. C.E. Moore; Atomic Energy Levels Vol. I, II, III; NBS 467 (1949); NSRDS-NBS 35 (1981)
51. A. Niehaus, M.W. Ruf; J. Phys. B 11, 2719 (1978)
52. A.A. Kruithoff, F.M. Penning; Physica 4, 430 (1937)

Lebenslauf

Am 21. September 1955 wurde ich als Sohn des Günter Kahlert und dessen Ehefrau Elisabeth, geb. Steinert, in Dortmund geboren.

Nach dem Besuch der Volksschule in der Zeit von 1962 bis 1966 wechselte ich zum Adalbert-Stifter-Gymnasium in Castrop-Rauxel, wo ich im Jahre 1974 die Abiturprüfung ablegte. Von 1974 bis September 1979 studierte ich an der Ruhr-Universität Bochum Physik und schloß mein Studium mit der Diplomprüfung ab.

Seit dem 1.10.1979 bin ich als wissenschaftliche Hilfskraft und anschließend ab 1.9.1981 als wissenschaftlicher Mitarbeiter an der Ruhr-Universität Bochum im Institut für Experimentalphysik AG II tätig.

